

Série A, n° 3999

N° d'ordre :

4850

THÈSES

présentées à la

FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Claude COHEN-TANNOUDJI

1^{re} THÈSE

Théorie quantique du cycle de pompage optique.
Vérification expérimentale des nouveaux effets prévus

2^e THÈSE : *Propositions données par la Faculté*

Soutenues le 14 Décembre 1962 devant la Commission d'examen :

MM. KASTLER	<i>Président</i>
JACQUINOT	} <i>Examineurs</i>
BROSSEL	
YVON	

MASSON & C^{ie}, ÉDITEURS
120, boulevard Saint-Germain
PARIS — 1962

Série A, n° 3999

N° d'ordre :

4850

THÈSES

présentées à la

FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Claude COHEN-TANNOUDJI

1^{re} THÈSE

Théorie quantique du cycle de pompage optique.
Vérification expérimentale des nouveaux effets prévus

2^e THÈSE : *Propositions données par la Faculté*

Soutenues le 14 Décembre 1962 devant la Commission d'examen :

MM. KASTLER

Président

JACQUINOT

BROSSEL

YVON

} *Examineurs*



MASSON & C^{ie}, ÉDITEURS
120, boulevard Saint-Germain
PARIS — 1962

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen M. ZAMANSKY.

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	CHAMPETIER	T	Chimie macromoléc.	PISOT	T	Techniques mathématiques de la physique.
DE BROGLIE	T	Théories physiques.	CUVILLIER	T	Micropaléontologie.	ROCH	T	Géologie.
PRENANT	T	Anatomie et histologie comparées.	JUNG	T	Pétrographie.	SCHATZMAN	T	Astrophysique.
GRASSÉ	T	Évolution des êtres organisés.	TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.	TERMIER	T	Paléontologie stratigraphique.
PRÉVOST	T	Chimie organique.	WIEMANN	T	Chimie org. et structurale.	ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.
CHAUDRON	T	Chimie appliquée.	JACQUINOT	T	Spectroscopie et physique céleste (Orsay).	LENNUIER	T	Physique (M.G.P.).
WYART	T	Minéralogie et Cristallographie.	VASSY	T	Physique de l'atmosphère.	RIZET	T	Génétique (Orsay).
TEISSIER	T	Zoologie.	DESTOUCHES	T	Théories physiques.	ROUTHIER	T	Géologie appliquée.
MANGENOT	T	Biologie végétale (Orsay).	AMIEL	T	Chimie générale.	M ^{me} TONNELAT	T	Physique théorique.
AUGER	T	Physique quantique et Relativité.	HOCART	T	Minéralogie et Cristallographie.	DIXMIER	T	Mathématiques (M.P.C.).
MONNIER	T	Physiologie générale.	J.-P. MATHIEU	T	Physique (Optique).	SOUCHAY	T	Chimie générale.
PIVETEAU	T	Paléontologie.	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.).	AIGRAIN	T	Electrotechnique générale.
ROCARD	T	Physique (E.N.S.).	MAY	T	Zoologie (Orsay).	BRUSSET	T	Chimie systématique.
CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.).	CHOQUET	T	Théorie des fonct. et topologie.	M. LÉVY	T	Physique théorique des hautes énergies (Orsay)
LAFFITTE	T	Chimie générale.	FELDMANN	T	Biologie végétale marine.	M ^{me} CHAIX	T	Chimie biologique.
FAVARD	T	Géométrie supérieure.	GUINIER	T	Physique des solides (Orsay).	M ^{me} HUREL-PY	T	Biologie végétale (P.C.B.).
COULOMB	T	Physique du Globe.	JOST	T	Physiologie comparée.	PIAUX	T	Chimie (M.P.C.).
M ^{lle} COUSIN	T	Biol. animale (S.P.C.N.).	FORTET	T	Calcul des probabilités et physique mathématique.	BRUN	T	Mécan. théorique des fluides.
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.	SCHWARTZ	T	Calcul diff. et intégr.	LEDERER	T	Chimie biologique.
DRACH	T	Zoologie.	CHOUARD	T	Physiologie végétale.	M ^{me} DUBREIL	T	Mathématiques (Agrég.)
KASTLER	T	Physique (E.N.S.).	MALAVARD	T	Aviation (Techn. Aéronaut.).	M ^{me} LELONG	T	Mathématiques (E.N.S.).
EPHROSSI	T	Génétique.	BRELOT	T	Calcul différentiel et intégral.	BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.).
RIVIÈRE	T	Géologie (S.P.C.N.) et sédim.	NORMANT	T	Synthèse organique générale.	COTTE	T	Physique électricité.
GAUTHERET	T	Biologie végétale (P.C.B.).	BÉNARD	T	Chimie minérale.	J.-E. DUBOIS	T	Chimie organique.
R. LUCAS	T	Recherches physiques.	BUVAT	T	Botanique (E.N.S.).	LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.).
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.	DUGUÉ	T	Statistiques mathém.	A. MICHEL	T	Chimie minérale (Orsay)
ARNULF	T	Optique appliquée.	SOULAIRAC	T	Psychophysiologie.	OLMER	T	Energetique générale.
MORAND	T	Physique Enseignement.	ULRICH	T	Physiologie végétale.	ROUAULT	T	Electricité (Orsay).
SOLEILLET	T	Physique (P.C.B.).	MARÉCHAL	T	Optique théorique et appliquée.	GAUTHIER	T	Mécanique appliquée.
FORTIER	T	Mécanique expérim. des fluides.	KIRRMANN	T	Théories chimiques.	BARCDEWITZ	T	Chimie physique.
DANJON	T	Astronomie.	CHADEFAUD	T	Botanique.	BROSSEL	T	Physique atomique.
PETIT	T	Biologie maritime.	M ^{lle} LE BRETON	T	Physiologie de la nutrition.	BUSER	T	Physiologie comparée.
QURNEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.	SALEM	T	Mathématiques générales.	CAMUS	T	Physiologie végétale (B.M.P.V.).
GALLIEN	T	Embryologie.	LELONG	T	Application de l'analyse à la géométrie.	CASTAING	T	Physique (Orsay).
EICHROEN	T	Botanique.	DEVILLERS	T	Anatomie et Histologie comparées.	CURIEN	T	Minéralogie et Cristallographie.
DE CUGNAC	T	Biologie végétale (S.P.C.N.).	EHRESMANN	T	Topologie algébrique.	MOYSE	T	Physiologie végétale (Orsay).
M ^{lle} CAUCHOIS	T	Chimie physique.	FRANÇON	T	Physique (S.P.C.N.).	NOIROT	T	Évolution des êtres organisés.
THELLIER	T	Physique du Globe.	GLANGEAUD	I	Géographie physique et Géologie dynamique.	PANNETIER	T	Chimie générale (Orsay).
L'HÉRITIER	T	Biologie générale (Orsay).	GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.).	POSSOMPES	T	Zoologie.
GRIVET	T	Radioelectricité (Orsay).				PULLMAN	T	Chimie théorique.
PONCIN	T	Mécanique générale.				TEILLAC	T	Physique nucléaire et Radioactivité
DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.				TONNELAT	T	Biologie physico-chim.
QUELET	T	Chimie organique.				VILLE	T	Econometrie.
CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.				VILLEMART	T	Chimie (P.C.B.).
						DODE	T	Chimie (Orsay)
						FREYMAN	T	Recherches physiques.
						GUINOCHE	T	Biol. végét. (S.P.C.N.) (Orsay).

PROFESSEURS (suite)

ROLLET	T	Chimie (P.C.B.).	LEMÉE	T	Physiol. vég. (B.M.P.V.) (Orsay).	M ^{lle} FOURCROY ...	Biol. végétale (S.P.C.N.)
M ^{lle} JOSIEN	T	Chimie (S.P.C.N.).	GUÉRIN	T	Chimie (M.P.C.) (Orsay).	M ^{me} CHOQUET-	
CHEVALLEY	T	Géométrie algébrique et théorie des groupes.	M. CHATELET	T	Chimie (P.C.B.).	BRUHAT	T Mécanique analytique et mécanique céleste.
ARNOULT	T	Electronique (Orsay).	JEAN	T	Physique nucléaire (Orsay).	M ^{lle} VEIL	Physiologie générale.
CHAPELLE	T	Physique (Orsay).	MATTLER	T	Physique (S.P.C.N.).	LWOFF	T Microbiologie.
DELANGE	T	Mathématiques (Orsay).	L. MICHEL	T	Physique théor. des hautes énergies (Orsay).	SIESTRUNCK	T Mécanique physique et expérimentale.
DENY	T	Mathématiques générales (Orsay).	BERGERARD	T	Zoologie (Orsay).	LACOMBE	T Métallurgie des métaux nucléaires.
GERMAIN	T	Mécanique théorique des fluides.	BERTEIN	T	Electronique (Orsay).	BROCHARD	T Physique P.C.B. (Orsay)
G. LUCAS	T	Géologie.	BOUSSIÈRES		Chimie des radioéléments (Orsay).	CABANNES	T Mécanique générale.
ALLARD	T	Chimie physique.	M ^{me} COUTURE	T	Thermodynamique et mécanique physique.	LESIEUR	T Mathématiques M.P.C. (Orsay).
BERTHELOT	T	Physique fondamentale des hautes énergies (Orsay).	ELLENBERGER	T	Géologie appliquée sur le terr.	MAZET	T Mécanique générale (Orsay).
BRICARD	T	Météorologie et physique de l'atmosphère.	FRANC		Biol. animale (P.C.B.).	CAIRE	Géographie phys. et Géol. dynamique.
M ^{me} ALBE-FESSARD.	T	Psychophysiologie.	SCHNELL		Botanique tropicale (Orsay).	COMOLET	T Mécanique des fluides.
FRIEDEL	T	Physique des solides (Orsay).	STOLEWSKI		Physiologie générale.	CORABOEUF	Physiologie animale.
M. JULIA		Études des mol. naturelles complexes.	ACHER		Chimie biol. (Orsay).	DELLOUE	Physique de l'exosphère.
LENDER	T	Biol. animale (S.P.C.N.) (Orsay).	BAUDOIN		Biologie animale (P.C.B.).	GORENFLOT	Botanique II (Orsay).
MAGAT		Physicochimie des radioéléments.	BEAUMONT		Biologie animale (S.P.C.N.).	HOUILLOU	Biologie animale (P.C.B.).
M ^{lle} QUINTIN	T	Electrochimie.	BLAMONT	T	Géophysique ionosphère.	J. JULLIEN	Chimie (P.C.B.).
MONOD	T	Chimie du métabolisme.	BOURREAU		Botanique.	MALGRANGE	T Tech. math. de la Phys.
BENOIT	T	Physiol. anim. (Orsay)	D. CURIE		Physique (M.G.P.).	OLIVIER	Anthropologie.
DE POSSEL	T	Analyse numérique.	DURAND-DELGA ...		Géologie.	NOZERAN	T Botanique II (Orsay).
CHARLOT	T	Chimie analytique.	FRÉON	T	Chimie organique (Orsay)	BLANC-LAPIERRE...	Phys. E.N.S. (Orsay)
HAÏSSINSKY	T	Radiochimie.	HELLER	T	Physiologie végétale.	CREVAUGEON ...	T Botanique (Orsay).
			TORTRAT	T	Calcul des probabilités.	KAHANE	T Mathématiques (Orsay).
			CAILLEUX		Géologie (S.P.C.N.).	SAMUEL	T Math. E.N.S. féminine.
			MAGNAN	T	Physique (S.P.C.N.).	KOURGANOFF	T Astronomie (Orsay).
			DAUDEL	T	Mécanique ondulatoire appliquée à la chimie théorique et à la physique nucléaire.	THIRY	T Mécanique céleste.

Secrétaire Général R. POULLAIN

A MES PARENTS

Le présent travail a été effectué au Laboratoire de Physique de l'E. N. S. durant les années 1960-1962.

Je suis heureux d'exprimer toute ma reconnaissance à MM. A. Kastler et J. Brossel qui ont dirigé de près ces recherches et m'ont constamment apporté une aide quotidienne et indispensable.

Mes camarades J.-P. Barrat et B. Cagnac ont grandement contribué à la réalisation de ce travail tant sur le plan théorique que sur le plan expérimental. Qu'ils soient ici remerciés ainsi que tous les autres chercheurs et techniciens du laboratoire qui m'ont toujours assuré d'excellentes conditions de travail.

Je remercie également MM. J. Yvon et A. Messiah pour les discussions fructueuses que nous avons eues à propos de quelques questions posées par la partie théorique de ce travail.

Mlle Brodschi et Mme Beck se sont chargées de la tâche ingrate de la frappe. Je leur en exprime toute ma gratitude.

Enfin, je remercie M. Y. Rocard, Directeur du Laboratoire, de sa généreuse hospitalité.

LABORATOIRE DE PHYSIQUE DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

(Professeur A. KASTLER)

24, rue Lhomond, Paris 5^e

THÉORIE QUANTIQUE DU CYCLE DE POMPAGE OPTIQUE

VÉRIFICATION EXPÉRIMENTALE DES NOUVEAUX EFFETS PRÉVUS

Par

C. COHEN-TANNOUDJI

INTRODUCTION

Les « méthodes de détection optique de la résonance magnétique » constituent un champ de recherches qui s'est considérablement développé durant ces dernières années. Elles constituent un puissant moyen d'études de la structure des niveaux atomiques. Appliquées à l'étude des états excités, elles sont également connues sous le nom de « méthodes de double résonance ». La première application de ces méthodes, dont le principe fut suggéré par Brossel et Kastler en 1949 (9), fut l'étude par Brossel de la structure du niveau excité 6^3P_1 du mercure (10). Leur extension à l'étude des niveaux fondamentaux fut rendue possible grâce à l'idée du « pompage optique », proposée en 1950 par Kastler (26). Depuis ces travaux originaux, le champ de recherches s'est considérablement élargi, dans de nombreuses directions. Pour une vue d'ensemble de la question, nous renvoyons le lecteur à deux récents articles de mise au point de Brossel (11) (12), dans lesquels de nombreuses références sont données.

Deux idées importantes sont à la base de ces méthodes : en excitant la résonance optique d'un atome par de la lumière convenablement polarisée, il est possible de transférer à l'atome une partie du moment angulaire transporté par le photon et de créer ainsi une orientation atomique. Les différences de population obtenues entre les sous-niveaux Zeeman permettent alors de préparer le sys-

tème dans un état où la résonance magnétique est facilement observable. La deuxième idée utilise la propriété suivante : deux sous-niveaux atomiques non dégénérés n'ont pas en général le même diagramme d'absorption ou d'émission d'énergie lumineuse. Toute variation de la répartition des populations entre les sous-niveaux Zeeman (en particulier celle causée par un champ de radiofréquence) se traduit donc par une modification du diagramme d'absorption ou d'émission global de la vapeur atomique et peut, par suite, être détectée sur la lumière absorbée ou réémise. Ce procédé de détection est particulièrement sensible : une transition entre sous-niveaux Zeeman est détectée au moyen de photons optiques qui possèdent une énergie considérablement supérieure à celle mise en jeu lors de cette transition.

Les méthodes de détection optique de la résonance magnétique reposent donc essentiellement sur les propriétés de l'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement. Il est par suite tout à fait naturel que de nouveaux problèmes concernant les propriétés de cette interaction se soient posés au fur et à mesure du développement des travaux. Un exemple de ce genre de problème est celui de la « cohérence ». Il fut posé initialement lors de la découverte du phénomène de diffusion multiple « cohérente » (2) (8) (23). Par la suite, son importance fut confir-

mée par la découverte d'autres effets optiques qui lui sont liés, comme, par exemple, les phénomènes de modulation de la lumière absorbée (6) (21) ou émise (22) par un atome qui subit la résonance magnétique. De façon générale, l'ensemble de ces faits pose le problème de l'absorption et de l'émission d'énergie lumineuse par un atome qu'un champ de radiofréquence a placé dans une superposition cohérente des sous-niveaux Zeeman.

Sur le plan théorique, le problème de l'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement a été abordé par Barrat dans le cadre de la théorie quantique des champs (2) (3). Il a mis au point un formalisme qui permet de décrire l'évolution de la matrice densité qui représente l'ensemble des atomes dans l'état excité sous l'effet du couplage avec des photons de résonance optique et de radiofréquence (ces derniers traités classiquement). Ce formalisme permet de rendre compte quantitativement des effets de diffusion multiple cohérente et des phénomènes de « battements lumineux » observés par Series (22).

Le travail de Barrat est cependant restreint à l'étude de l'état excité. Il laisse un certain nombre de problèmes en suspens, en particulier ceux qui sont relatifs à la résonance magnétique dans l'état fondamental et qui font intervenir la « cohérence » ainsi introduite entre les sous-niveaux de cet état. L'importance de ces problèmes est démontrée expérimentalement : toute une catégorie de méthodes de détection optique de la résonance magnétique dans l'état fondamental repose sur la possibilité d'observer dans certaines conditions une modulation de la lumière absorbée par la vapeur (effet Dehmelt) (21). Autre exemple : on constate expérimentalement une influence de l'intensité lumineuse sur la largeur (14) (15) des raies de résonance magnétique dans l'état fondamental. Tous ces phénomènes peuvent se comprendre de façon qualitative en considérant que l'absorption d'un photon optique par un atome arrache ce dernier à l'action cohérente du champ de radiofréquence. Une telle image n'est cependant pas suffisante pour un calcul quantitatif de l'effet. Elle ne permet pas surtout de préciser ce que devient la « cohérence » ainsi arrachée à l'état fondamental au cours du cycle de pompage optique : on peut se demander par exemple s'il n'y a pas une relation de phase entre les coefficients du développement de la fonction d'onde suivant les sous-niveaux de l'état fondamental avant et après le cycle de pompage optique. Enfin, le fait que la largeur des raies de résonance magnétique dépende de l'intensité lumineuse amène à se poser, de façon plus générale, le problème de la perturbation du système étudié, l'atome, par la lumière, qui dans ces expériences, peut être considéré en quelque sorte comme l'instrument de mesure.

Il nous a donc semblé nécessaire de reprendre l'étude théorique complète du cycle de pompage optique lui-même ; en utilisant la théorie quantique des champs pour la description du champ de rayonnement (le champ de radiofréquence étant par contre traité classiquement) ; le formalisme de la matrice densité pour la description de l'ensemble des atomes, et ceci afin de rendre compte des effets de « cohé-

rence » aussi bien dans l'état fondamental que dans l'état excité.

L'étude théorique correspondante, faite en collaboration avec Barrat, a été publiée en détail dans deux articles du Journal de Physique que nous désignerons dans la suite par J — P1 (4) et J — P2 (5). Le but du présent travail est de présenter une interprétation physique détaillée des résultats de la théorie et de décrire la vérification expérimentale des effets essentiellement nouveaux que le calcul du cycle de pompage a permis de prévoir.

La première partie de notre travail est donc consacrée à la théorie du cycle de pompage optique. Plutôt que de reprendre l'exposé détaillé des calculs qui est déjà fait dans J — P1 et J — P2, il nous a semblé intéressant d'essayer de dégager de ces calculs une image physique claire du cycle de pompage. Nous adoptons pour cela un mode de présentation très synthétique qui permet de montrer que tous les phénomènes observés jusqu'à présent dans les expériences de pompage optique, aussi complexes soient-ils, peuvent être analysés et compris à partir de quelques idées physiques très simples. La raison profonde d'une telle simplicité réside dans le fait que le phénomène de résonance optique peut, dans ces expériences, être décrit comme une succession de deux processus distincts, entièrement indépendants : l'absorption et la réémission d'un photon. Cette propriété elle-même est une conséquence des caractéristiques communes à toutes les sources lumineuses utilisées jusqu'à présent dans ces expériences : faible densité de photons, largeur spectrale importante de la raie excitatrice, grande indétermination sur la phase de l'onde lumineuse.

La présentation ainsi choisie permet de voir sous un angle nouveau plusieurs phénomènes importants, en particulier les « phénomènes de cohérence entre sous-niveaux Zeeman », qui sont rattachés au comportement des moments angulaires transversaux (perpendiculaires au champ magnétique statique H_0) de l'atome et du photon au cours du cycle de pompage. La complexité apparente de ces phénomènes provient uniquement du fait qu'en l'absence de toute interaction mutuelle, le moment angulaire transversal n'a pas le même mouvement propre sur l'atome et sur le photon : il précesse autour du champ magnétique pour le premier, reste immobile pour le second. Une telle différence de mouvement propre n'existe pas pour le moment angulaire longitudinal, ce qui rend les échanges de cette grandeur entre l'atome et le photon beaucoup plus simples à décrire.

Les effets essentiellement nouveaux que le calcul du cycle de pompage a permis de prévoir sont analysés et interprétés physiquement. Dans cette introduction nous citerons seulement deux des plus importants de ces effets :

a) Des effets radiatifs sont associés au processus d'absorption. Ils sont très analogues aux effets bien

connus qui sont liés au processus d'émission spontanée (25) : durée de vie radiative d'un niveau excité ; self-énergie ou Lamb-shift (28) de ce niveau.

Le seul fait d'illuminer un atome avec des photons de résonance optique confère aux sous-niveaux de l'état fondamental une durée de vie finie et modifie leur énergie, ce qui se traduit par un élargissement et un déplacement des raies de résonance magnétique dans l'état fondamental.

b) Il y a possibilité d'une conservation partielle de la « cohérence » au cours du cycle de pompage optique. En termes plus physiques, le moment angulaire transversal de l'atome après le cycle de pompage peut conserver une certaine mémoire de la direction qu'il avait avant le cycle de pompage. Dans l'état fondamental, le champ de radiofréquence peut donc agir sur un atome donné de façon cohérente, pendant une durée plus longue que le temps moyen séparant l'absorption successive de deux photons par le même atome. Cette non-destruction de la direction angulaire transversale au cours des processus d'absorption et d'émission spontanée a également une autre conséquence importante. Comme les précessions de Larmor ω_e et ω_f sont en général différentes dans l'état excité et dans l'état fondamental, le moment angulaire transversal de l'état fondamental prend, après chacun des brefs passages que l'atome effectue dans l'état excité, une avance ou un retard suivant les signes relatifs de $\omega_e - \omega_f$ et ω_f . Le pompage optique entraîne donc une modification de la fréquence de Larmor moyenne de l'état fondamental en la cou-

plant à celle de l'état excité ; ceci entraîne l'existence d'un second type de déplacement des raies de résonance magnétique causé par le faisceau lumineux, très différent cependant par sa nature du précédent (la grandeur de ce second type de déplacement dépend, par exemple, de la valeur du champ magnétique, ce qui n'est pas le cas pour le premier).

Étant donné l'importance de ces effets, il nous a semblé nécessaire de procéder à une vérification expérimentale quantitative de l'ensemble des résultats nouveaux prévus par la théorie. C'est à la description et à la discussion de ces diverses expériences qu'est consacrée la seconde partie de ce travail.

Nous avons choisi dans ce but les isotopes impairs du mercure auxquels Cagnac venait d'appliquer avec succès les méthodes du pompage optique (13) (14). Le cas de l'isotope ^{199}Hg est particulièrement simple et intéressant. Cet élément ne possède tout d'abord que deux sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental. Les coïncidences bien connues de la raie 2 537 Å permettent d'autre part, en utilisant des lampes à isotopes séparés, d'exciter sélectivement l'une ou l'autre des deux composantes hyperfinies de la raie de résonance optique de cet élément. Enfin, les raies de résonance magnétique sont très fines par suite de la faiblesse du processus de relaxation thermique. Nous avons pu ainsi nous placer dans des conditions expérimentales très bien définies — entièrement calculables — et soumettre chacun des effets prévus au test de l'expérience. Dans tous les cas, les prévisions théoriques se sont trouvées vérifiées de façon quantitative (16) (17) (18).

PARTIE THÉORIQUE

CHAPITRE PREMIER

DESCRIPTION DU FORMALISME MATHÉMATIQUE

Introduction. — Avant d'aborder la théorie du cycle de pompage optique, il nous a semblé nécessaire de rappeler tout d'abord un certain nombre de notions importantes bien que le plus souvent très élémentaires. Aussi bien la conduite des calculs, que l'interprétation physique des résultats nécessitent en effet une compréhension claire du formalisme mathématique utilisé pour décrire les phénomènes physiques.

Nous commençons tout d'abord par étudier les deux systèmes qui sont en présence : l'ensemble des atomes et le champ de rayonnement. La description de l'état dans lequel chacun d'eux se trouve est rappelée. Chaque symbole mathématique est défini et est rattaché à une

grandeur physique, ce qui permet de se représenter physiquement un « état » donné du système. Nous définissons de façon précise la notion de « cohérence » pour le système atomique et pour un mode du champ de rayonnement. Nous montrons qu'elle est liée aux grandeurs physiques qui, n'étant pas compatibles avec l'énergie, ne sont pas des constantes du mouvement, et ont par suite un mouvement propre (pour l'atome, le moment angulaire transversal, ou le moment dipolaire électrique ; pour le champ de rayonnement, la phase, les champs et potentiels électromagnétiques).

Nous étudions ensuite l'interaction qui couple les deux systèmes entre eux. Les éléments de matrice du

hamiltonien qui décrit ce couplage sont explicités et interprétés physiquement : on montre comment les deux systèmes peuvent échanger de l'énergie, du moment angulaire et de la « cohérence ». Les processus élémentaires d'interaction : absorption, émission induite et émission spontanée sont analysés et comparés entre eux.

Nous abordons enfin le problème de la description du faisceau lumineux. Nous avons choisi pour cela un modèle particulièrement simple où la phase de l'onde lumineuse est complètement indéterminée. Pour justifier un tel choix, on rappelle que dans le domaine optique et avec les sources usuelles, les diverses cellules de l'espace des phases renferment un nombre moyen de photons très petit devant l'unité, ce qui entraîne une grande indétermination sur la phase.

A. — Le système atomique

Les atomes de la vapeur sont supposés sans interactions mutuelles. Les degrés de liberté externes correspondant à l'énergie cinétique de translation ne sont pas quantifiés. La position de l'atome est représentée classiquement :

$$\vec{R} = \vec{R}_0 + \vec{v}t.$$

La répartition des vitesses $\vec{v}$ est celle de l'équilibre thermique.

1° Les niveaux d'énergie. — On s'intéresse ici uniquement au niveau fondamental et au niveau de résonance optique. De façon plus précise, les calculs développés dans le présent travail sont relatifs au cas suivant. L'état fondamental a un moment angulaire électronique $J = 0$ et un spin nucléaire I ; l'état excité est le sous-niveau hyperfin F d'un niveau de moment angulaire électronique $J = 1$. C'est le cas des isotopes impairs du mercure pour la raie $2\,537\text{ Å}$: $6^1S_0 - 6^3P_1$ (14).

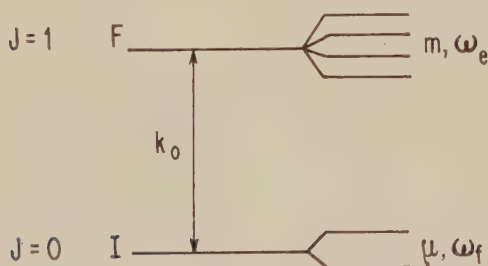


FIG. 1.

Le principe du calcul est évidemment le même pour le cas des atomes alcalins,

k_0 représente l'énergie qui sépare les deux états. En l'absence de champ extérieur, les deux niveaux d'énergie sont dégénérés.

Si un champ magnétique H_0 est appliqué le long de l'axe O_z , cette dégénérescence est levée : l'état fondamental et l'état excité se décomposent respectivement en $2I + 1$ sous-niveaux μ et $2F + 1$ sous-niveaux m . Les énergies de ces niveaux sont :

$$E_\mu = \mu\omega_f, \quad E_m = k_0 + m\omega_e$$

(Dans tout ce qui suit, on fait $\hbar = c = 1$). ω_e et ω_f , écarts Zeeman dans l'état excité et dans l'état fondamental sont proportionnels à H_0 .

2° Description de « l'état » d'un atome. — L'état d'un atome qui se trouve dans un sous-niveau Zeeman μ ou m est représenté par le symbole $|\mu\rangle$ ou $|m\rangle$. Dans un tel état, l'énergie, la grandeur du moment angulaire total $\vec{F}^2$, la composante F_z de ce moment angulaire suivant O_z ont des valeurs bien déterminées.

L'état le plus général dans lequel l'atome puisse se trouver à l'instant t est une *superposition linéaire* des états $|\mu\rangle$ et $|m\rangle$ que l'on désigne par $|\chi(t)\rangle$:

$$|\chi(t)\rangle = \sum_{\mu} a_{\mu}(t) |\mu\rangle + \sum_m a_m(t) |m\rangle = \sum_E a_E(t) |E\rangle \quad (I, A, 1)$$

(Le symbole E est utilisé quand on ne veut pas différencier μ et m).

La valeur moyenne d'une grandeur physique G caractéristique de l'atome dépend de l'état $|\chi(t)\rangle$ dans lequel l'atome se trouve et peut s'écrire :

$$\langle G(t) \rangle_{\chi} = \sum_{E, E'} a_E(t) a_{E'}^*(t) G_{E'E}. \quad (I, A, 2)$$

$G_{E'E}$ étant l'élément de matrice de l'opérateur qui représente la grandeur G entre les états E et E' :

$$G_{E'E} = \langle E' | G | E \rangle.$$

L'énergie et les grandeurs compatibles avec l'énergie, c'est-à-dire que l'on peut mesurer en même temps qu'elle, sont représentées par des matrices diagonales :

$$G_{EE'} = \delta_{EE'} G_E.$$

D'après (I, A, 2), leurs valeurs moyennes ne dépendent que des modules $|a_E(t)|^2$ des coefficients du développement (I, A, 1), c'est-à-dire des probabilités pour que l'atome se trouve dans tel ou tel sous-niveau. Les autres grandeurs physiques ont, par contre, une valeur moyenne qui dépend également des $a_E(t) a_{E'}^*(t)$ avec $E \neq E'$, c'est-à-dire des *phases relatives* des coefficients du développement (I, A, 1).

Cette distinction entre les deux types de grandeurs n'est pas purement formelle. L'équation de Schrödinger qui décrit l'évolution de l'atome dans le temps donne en effet :

$$\begin{cases} a_{\mu}(t) = a_{\mu}(t_0) e^{-iE_{\mu}(t-t_0)} \\ a_m(t) = a_m(t_0) e^{-iE_m(t-t_0)} \end{cases} \quad (\text{I, A, 3})$$

On en déduit que les modules des $a_{\mu}(t)$ et $a_m(t)$ restent constants au cours du temps : comme leurs valeurs moyennes dépendent uniquement de ces quantités, on en déduit que l'énergie et les grandeurs physiques compatibles avec elle sont des *constantes du mouvement*.

Cette propriété importante, qui n'est d'ailleurs que l'expression quantique du principe de conservation de l'énergie, ne doit cependant pas faire oublier les autres grandeurs physiques qui peuvent avoir à jouer un rôle important, comme nous le verrons dans ce travail. A titre d'exemple, nous allons étudier deux de ces grandeurs, le moment angulaire transversal et le moment dipolaire électrique de l'atome.

3° Le moment angulaire transversal. — Les opérateurs $F_{\pm} = F_x \pm iF_y$ qui représentent cette grandeur physique n'ont pas d'éléments de matrice entre l'état fondamental μ et l'état excité m ($F_{\pm}$ ne change pas la parité). On peut donc parler d'un moment angulaire transversal dans l'état excité (ou fondamental) :

$$\langle F_{\pm}(t) \rangle = \sum_{\mu\mu'} a_{\mu}(t) a_{\mu'}^*(t) \langle \mu' | F_{\pm} | \mu \rangle + \sum_{mm'} a_m(t) a_{m'}^*(t) \langle m' | F_{\pm} | m \rangle \quad (\text{I, A, 4})$$

Les seuls éléments de matrice non nuls de $F_{\pm}$ sont tels que $\mu - \mu' = \pm 1$ (ou $m - m' = \pm 1$). On déduit alors très facilement de (I, A, 3) et (I, A, 4) que la valeur moyenne du moment angulaire transversal exécute un mouvement circulaire de fréquence $\frac{\omega_f}{2\pi}$ dans

l'état fondamental, $\frac{\omega_e}{2\pi}$ dans l'état excité.

On retrouve ainsi facilement l'image classique de la *précession de Larmor*.

On verrait de même que la valeur moyenne de grandeurs telles que $F_{\pm}^2, F_{\pm}^3 \dots$ fait intervenir les quantités $a_{\mu} a_{\mu'}^* (a_m a_{m'}^*)$ avec $\mu - \mu'$ (ou $m - m'$) = $\pm 2, \pm 3 \dots$ et ainsi de suite.

4° Le moment dipolaire électrique $\vec{D}$:

$$\vec{D} = e \sum_j \vec{r}_j$$

e est la charge de l'électron, $\vec{r}_j$ la distance entre le noyau et le $j^{\text{ème}}$ électron.

$\vec{D}$ changeant la parité n'a d'éléments de matrice qu'entre un état μ et un état m :

$$\langle \vec{D}(t) \rangle = \sum_{\substack{m, \mu \\ (m - \mu = 0, \pm 1)}} a_m(t) a_{\mu}^*(t) \langle \mu | \vec{D} | m \rangle + \text{c. c.} \quad (\text{I, A, 5})$$

D'après (I, A, 3) et (I, A, 5), le mouvement de $\langle \vec{D} \rangle$ est composé d'une série de mouvements sinusoïdaux de pulsation $k_0 + m\omega_e - \mu\omega_f$.

On retrouve ainsi l'image classique du dipôle électrique vibrant aux fréquences *optiques* des diverses composantes de la raie de résonance.

5° Description de l'ensemble des atomes. Matrice densité. Notions de cohérence. — Nous nous sommes intéressés jusqu'à présent au cas d'un seul atome. La description de l'état de cet atome se fait au moyen des nombres complexes $a_{\mu}(t)$ ou, ce qui revient au même, au moyen des quantités $\sigma_{\mu\mu'} = a_{\mu}(t) a_{\mu'}^*(t)$. La matrice σ est appelée la *matrice densité*. Toutes les prévisions physiques concernant l'atome se calculent à partir de σ . L'expression (I, A, 2) s'écrit :

$$\langle G(t) \rangle = \text{trace } \sigma(t) \cdot G.$$

La description d'un ensemble d'atomes identiques et sans interactions mutuelles se fait au moyen d'une *matrice densité globale*, qui est la moyenne des matrices densités individuelles représentant chacun des atomes. La mécanique statistique quantique nous enseigne que cette description est la plus complète qu'il soit possible de donner et la seule valable.

Les éléments diagonaux $\sigma_{\mu\mu}$ de la matrice densité globale représentent la probabilité moyenne pour qu'un élément arbitraire de l'ensemble soit dans l'état μ . Ce sont les *populations* des différents niveaux d'énergie. Par définition, nous appellerons *cohérence* entre les états μ et μ' , l'élément non diagonal $\sigma_{\mu\mu'}$, s'il existe (19).

La *cohérence entre les sous-niveaux Zeeman*, $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$ est liée à l'existence d'un moment angulaire transversal *global* (l'une au moins des quantités $\langle F_{\pm} \rangle, \langle F_{\pm}^2 \rangle, \dots$ est différente de 0). Le fait qu'une telle cohérence existe implique physiquement que les directions transversales des différents moments angulaires individuels ne se répartissent pas de façon isotrope. Les précessions de Larmor des différents atomes se font donc plus ou moins en phase. Une telle situation est notamment réalisée lorsqu'on effectue la résonance magnétique : le champ de radiofréquence introduit, en effet, une direction transversale privilégiée et « pilote » en phase la précession des différents dipôles magnétiques. C'est là la méthode favorite qui est utilisée pour introduire de la « cohérence » dans un système atomique.

On verrait de même que l'existence d'une *cohérence* $\sigma_{\mu\mu'}$ entre l'état excité et l'état fondamental implique que la phase de la vibration des différents dipôles élec-

triques ne varie pas aléatoirement d'un atome à l'autre. Cette situation serait réalisée si l'on « attaquait » l'ensemble des atomes par une onde lumineuse suffisamment cohérente (au sens optique du terme) dans le temps et dans l'espace.

De façon générale, nous voyons que la cohérence $\sigma_{EE'}$ entre les niveaux E et E' fait intervenir une grandeur physique qui, n'étant pas compatible avec l'énergie, a un mouvement propre, l'une des composantes de ce mouvement se faisant à la fréquence E — E'. Le fait que $\sigma_{EE'} \neq 0$ implique que la *phase* du mouvement à la fréquence E — E' de cette grandeur physique ne varie pas aléatoirement d'un atome à l'autre. Il y a alors cohérence, au sens propre du terme, entre les mouvements exécutés par les différents atomes et relatifs à cette grandeur physique. Une telle situation est réalisée lorsqu'une même cause, commune à tous les atomes, excite ce mouvement. La grandeur physique exécute alors un mouvement macroscopique observable. Il est impossible de rendre compte d'une telle situation, et par suite des effets qui lui sont associés, si l'on décrit l'ensemble des atomes uniquement en termes de populations, description qui est purement statique.

Les expériences qui seront décrites dans le présent travail ne font intervenir que les cohérences du type $\sigma_{mm'}$ ou $\sigma_{\mu\mu'}$ entre les sous-niveaux Zeeman de l'état excité ou entre ceux de l'état fondamental (y compris le cas où existe une structure hyperfine).

A ce stade il n'est peut-être pas prématuré de remarquer que l'existence d'une telle cohérence dans le système atomique se traduit par l'apparition de caractères nouveaux dans les propriétés optiques de la vapeur : c'est la description et l'interprétation de ces propriétés optiques que nous donnons en détail dans la suite de ce mémoire. Il est clair que ces phénomènes ne font pas intervenir la cohérence au sens optique du terme (au sens des interférences) entre les processus lumineux relatifs aux différents atomes et qui seraient liés à l'existence de termes de type $\sigma_{m\mu}$. Dans un but de clarté et pour rappeler leur fréquence d'évolution, nous parlerons de *cohérence hertzienne* ($\sigma_{mm'}$, $\sigma_{\mu\mu'}$) par opposition à la *cohérence optique* $\sigma_{m\mu}$.

6° Le problème de la « cohérence hertzienne » en résonance optique. — Si nous avons tant insisté sur des notions qui n'ont rien d'original, c'est uniquement dans le but de dégager clairement le problème de la cohérence hertzienne en résonance optique.

Le pompage optique a été décrit la plupart du temps uniquement en termes de populations des différents niveaux d'énergie. Or, l'une de ses principales applications est de permettre d'effectuer la résonance magnétique grâce aux différences de populations qu'il permet d'obtenir entre les sous-niveaux Zeeman. Dans les expériences correspondantes, les quantités $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$ ne sont donc pas nulles. Quelles sont les conséquences de cette situation ? En termes de grandeurs physiques ;

Comment se comporte par exemple le moment angulaire transversal de l'atome lors de l'interaction avec le champ de rayonnement ? Joue-t-il un rôle lors de l'absorption ou de l'émission de photons ? Comment évolue-t-il au cours du cycle de pompage optique ? Des questions semblables peuvent se poser également à propos du moment dipolaire électrique.

Une dernière remarque : le fait de mettre sur le même plan le moment angulaire longitudinal et le moment transversal ne permet pas cependant pour autant de résoudre immédiatement le problème par une généralisation simple des résultats relatifs au moment angulaire longitudinal. Dans l'histoire du pompage optique, les phénomènes liés à la « cohérence hertzienne » se sont dégagés plus lentement et plus difficilement. Nous essaierons de montrer dans ce travail que cette différence de comportement provient essentiellement du fait suivant : en l'absence d'interaction avec le champ de rayonnement, le moment angulaire *longitudinal* est une constante du mouvement. Entre deux processus élémentaires d'absorption ou d'émission de photons, il n'évolue pas. Par contre, le moment angulaire *transversal* a un mouvement propre et évolue par suite entre deux processus d'interaction. Par surcroît la précession de Larmor se fait à des vitesses différentes dans l'état excité et dans l'état fondamental. Tous les caractères particuliers des phénomènes de cohérence hertzienne se comprennent aisément à partir de là, ce qui donne une grande unité à la question.

B. — Le champ de rayonnement

Nous utiliserons ici la théorie du champ de rayonnement libre de Dirac, telle qu'elle est exposée dans l'ouvrage de Heitler (25) et reprise dans les travaux de Barrat (2) (3). Nous saisisons cette occasion pour définir nos notations.

1° L'énergie et l'impulsion du champ de rayonnement. Le photon. — En théorie classique, on décompose le champ électromagnétique suivant un ensemble de *modes* de vibrations, satisfaisant aux conditions aux limites, indépendants entre eux et orthogonaux. L'ensemble des ondes planes dans l'espace libre en est un exemple. Chaque onde plane $e^{i(\vec{k}\vec{r} + \omega t)}$ est représentée par son vecteur d'ondes $\vec{k}_i$ et sa pulsation ω_i . $\vec{k}_i$ et ω_i sont liés par la relation $\omega_i = |\vec{k}_i|$.

A chacun de ces modes, on associe en théorie quantique un *oscillateur harmonique*. Le champ de rayonnement est donc représenté quantiquement par une infinité d'oscillateurs harmoniques indépendants. L'état dans lequel il se trouve est connu lorsqu'on connaît l'état dans lequel se trouve chacun de ces oscillateurs harmoniques,

Pour simplifier les notations, désignons par « mode $\vec{k}_i$ » l'oscillateur harmonique associé à l'onde plane $\vec{k}_i$. Les niveaux d'énergie du mode $\vec{k}_i$ sont équidistants, le $n^{\text{ième}}$ niveau ayant l'énergie nk_i (On prend comme zéro d'énergie celle correspondant au cas où tous les modes sont dans leur état le plus bas).

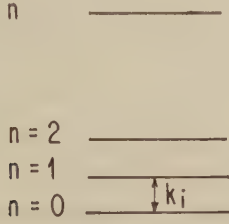


FIG. 2.

Les états propres de l'énergie $|n\rangle$ étant choisis comme états de base, l'état le plus général du mode $\vec{k}_i$ s'écrit :

$$|\xi(t)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} a_n(t) |n\rangle. \quad (\text{I, B, 1})$$

Lorsque le mode $\vec{k}_i$ se trouve dans l'état $|n\rangle$, l'énergie et l'impulsion ont des valeurs bien déterminées qui sont respectivement nk_i et $n\vec{k}_i$. Ce résultat s'interprète simplement en disant que l'état $|n\rangle$ du mode $\vec{k}_i$ renferme n photons ; les photons du mode $\vec{k}_i$ ayant une énergie k_i et une impulsion $\vec{k}_i$.

Lorsque le mode $\vec{k}_i$ se trouve dans l'état $|\xi\rangle$, le nombre de photons n'a plus de valeur bien déterminée. La probabilité pour qu'il y ait n photons est $|a_n(t)|^2$. Dans l'état $|\xi(t)\rangle$, la valeur moyenne du nombre de photons N , et par suite celle de l'énergie E et de l'impulsion $\vec{K}$ ne dépendent que des $|a_n(t)|^2$. Elles valent respectivement :

$$\begin{cases} \langle N \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} n |a_n(t)|^2 \\ \langle E \rangle = \langle N \rangle k_i \\ \langle \vec{K} \rangle = \langle N \rangle \vec{k}_i \end{cases} \quad (\text{I, B, 2})$$

En l'absence de toute autre interaction, ces quantités ne varient pas au cours du temps : ce sont des constantes du mouvement. Ceci résulte comme plus haut de l'expression donnant $a_n(t)$:

$$a_n(t) = a_n(t_0) e^{-iE_n(t-t_0)}. \quad (\text{I, B, 3})$$

2° Opérateurs de création et d'annihilation d'un photon. — Avant d'aller plus loin, il est nécessaire de rappeler les propriétés des opérateurs A_i et A_i^+ qui jouent un rôle très important dans la théorie quantique de l'oscillateur harmonique (29). L'état $|n\rangle$ est transformé par A_i^+ en $|n+1\rangle$ et par A_i en $|n-1\rangle$. De façon plus précise, on a :

$$\begin{cases} A_i^+ |n\rangle = \sqrt{n+1} |n+1\rangle \\ A_i |n+1\rangle = \sqrt{n+1} |n\rangle \end{cases} \quad (\text{I, B, 4})$$

Leur effet étant d'augmenter ou de diminuer le nombre de photons d'une unité, A_i^+ et A_i sont appelés « opérateurs de création et d'annihilation » (ils portent également ce nom dans la théorie de l'oscillateur harmonique) d'un photon dans le mode $\vec{k}_i$. A_i^+ et A_i ne commutent pas entre eux :

$$[A_i, A_i^+] = 1. \quad (\text{I, B, 5})$$

Ce qui fait jouer un rôle important à A_i et A_i^+ , c'est le fait que les opérateurs représentant les diverses grandeurs physiques liées au champ électromagnétique s'expriment simplement à partir d'eux. On peut ainsi établir à partir de (I, B, 4) que :

$$\begin{cases} N = A_i^+ A_i \\ E = k_i A_i^+ A_i \\ \vec{K} = \vec{k}_i A_i^+ A_i \end{cases} \quad (\text{I, B, 6})$$

3° Les potentiels et champs électromagnétiques.

— L'énergie E , l'impulsion $\vec{K}$, le nombre de photons N ne sont pas les seules grandeurs physiques caractéristiques du champ de rayonnement. D'autres grandeurs importantes sont les *potentiels et champs électromagnétiques*. En théorie classique, la description d'une de ces grandeurs, le champ électrique $\mathcal{E}$ par exemple, nécessite la connaissance de deux quantités, une amplitude $\mathcal{E}_0$ et une phase φ :

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 e^{i(k_i t + \varphi)}. \quad (\text{I, B, 7})$$

En théorie quantique, les opérateurs qui représentent les potentiels et champs électromagnétiques sont des combinaisons linéaires de A_i et A_i^+ . Par suite de (I, B, 5) A_i et A_i^+ ne commutent pas avec $A_i^+ A_i$, c'est-à-dire l'énergie. Les potentiels et champs électromagnétiques sont donc des grandeurs physiques non compatibles avec l'énergie. Ce ne sont pas des constantes du mouvement. Les valeurs moyennes de ces grandeurs dans l'état $|\xi(t)\rangle$ du mode $\vec{k}_i$ ne font intervenir que des quantités du type $a_n(t)a_{n'}^*(t)$ avec $n - n' = \pm 1$ (par suite des propriétés des A_i et A_i^+). D'après (I, B, 3), on en déduit que ces valeurs moyennes effectuent un mou-

vement sinusoïdal de fréquence $\frac{k_i}{2\pi}$, ce qui redonne bien l'image classique. D'autre part, si le nombre de photons est bien déterminé, c'est-à-dire si le champ de rayonnement est dans un état propre $|n\rangle$, les valeurs moyennes des potentiels et des champs sont nulles puisque toutes les quantités du type $a_n(t)a_{n'}^*(t)$ avec $n \neq n'$ sont nulles. Le fait d'être sûr du nombre de photons entraîne donc une indétermination complète sur la phase de la vibration des champs et potentiels électromagnétiques.

Pour résumer cette étude, nous voyons qu'il existe également pour le champ de rayonnement des grandeurs physiques non compatibles avec l'énergie, qui ont un mouvement propre et qui font intervenir des « cohérences » $a_n(t)a_{n'}^*(t)$ entre les différents niveaux d'énergie des modes. Il est donc tout aussi incorrect de décrire le champ de rayonnement uniquement en termes de photons qu'il l'est de décrire un ensemble d'atomes uniquement en termes de populations.

Par suite de leurs fréquences d'évolution, nous désignerons par *cohérence optique* du champ électromagnétique les quantités $a_n(t)a_{n'}^*(t)$ avec $n \neq n'$ (Ce sont ces quantités qui sont à l'origine de la cohérence d'une onde lumineuse, telle qu'elle est définie en optique classique).

4° La polarisation du champ de rayonnement. Le moment angulaire du photon. — Une autre grandeur physique importante est la polarisation du champ de rayonnement. Elle est liée au caractère vectoriel de ce champ. Dans une onde plane, le champ électrique, le champ magnétique et la direction de propagation forment un trièdre trirectangle direct. La polarisation est connue lorsqu'on connaît la direction $\vec{e}_\lambda$ du champ électrique. $\vec{e}_\lambda$ est perpendiculaire à $\vec{k}_i$.

Désignons par $\vec{u}_x, \vec{u}_y, \vec{u}_z$ les vecteurs unitaires de trois axes Ox, Oy, Oz , le champ magnétique statique H_0 étant porté par Oz . Posons d'autre part $\vec{u}_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{u}_x \pm i\vec{u}_y)$, $\vec{u}_0 = \vec{u}_z$. Lorsque la direction de propagation de l'onde plane $\vec{k}_i$ est parallèle à Oz et que $\vec{e}_\lambda$ est confondu avec $\vec{u}_+$ ou $\vec{u}_-$, les états de polarisation correspondants sont bien connus et désignés par σ^+ et σ^- . Lorsque la direction de propagation est perpendiculaire à H_0 et que $\vec{e}_\lambda$ est confondu avec $\vec{u}_0$, l'état de polarisation correspondant est désigné par π . Dans le cas général, le vecteur $\vec{e}_\lambda$, qui est toujours perpendiculaire à $\vec{k}_i$, peut être décomposé suivant les trois vecteurs unitaires orthogonaux $\vec{u}_+, \vec{u}_-, \vec{u}_0$:

$$\begin{cases} \vec{e}_\lambda = a_+ \vec{u}_+ + a_0 \vec{u}_0 + a_- \vec{u}_- \\ \vec{e}_\lambda \cdot \vec{k}_i = 0 \end{cases} \quad (1, B, 8)$$

Les modes du champ de rayonnement correspondant aux différentes ondes planes, sont donc repérés par $\vec{k}_i$ et $\vec{e}_\lambda$, c'est-à-dire par l'impulsion et la polarisation.

Au lieu de développer le champ de rayonnement en ondes planes, on aurait pu le développer en ondes sphériques. On peut montrer que les modes correspondant aux différentes ondes sphériques sont repérés par la parité P et le moment angulaire total J .

Toute onde plane peut être décomposée en ondes sphériques. Les photons du mode $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$ n'ont donc pas de moment angulaire et de parité bien déterminés puisque le développement d'une onde plane fait intervenir toutes les ondes sphériques.

Dans le problème qui nous intéresse ici, il est cependant possible de parler du moment angulaire des photons $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$. En effet, les transitions optiques utilisées dans les expériences de pompage optique sont toutes des *transitions dipolaires électriques*. Ceci entraîne que l'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement fait intervenir uniquement la partie dipolaire électrique du mode $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$. En d'autres termes, parmi toutes les ondes sphériques qui interviennent dans le développement de l'onde plane $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$, seule l'onde dipolaire électrique, qui correspond à $P = -$ et à $J = 1$, interagit avec l'atome.

Dans la suite de ce travail, nous parlerons donc du *moment angulaire des photons* $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$, étant bien entendu que nous désignons par là le moment angulaire de la *partie dipolaire électrique de l'onde plane* $\vec{k}_i, \vec{e}_\lambda$.

En ce qui concerne l'interaction avec l'atome, le photon apparaît donc comme une particule ayant un moment angulaire $J = 1$. La projection de ce moment angulaire sur l'axe Oz (qui est la direction du champ magnétique, et non celle de $\vec{k}_i$) peut prendre les trois valeurs $+1, -1, 0$. A ces trois valeurs propres distinctes correspondent trois états propres orthogonaux $|+1\rangle, |-1\rangle, |0\rangle$ pour le photon, qui doivent être associés aux trois états de polarisation σ^+, σ^-, π . Un photon σ^+ a un moment angulaire $+1$ par rapport à Oz ; un photon σ^- , -1 ; un photon π , 0 .

Nous dirons, par définition, que la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est « cohérente » si dans le développement (I, B, 8), 2 au moins des quantités a_+, a_0, a_- sont différentes de zéro. Les seules polarisations qui ne sont pas « cohérentes » sont les polarisations σ^+, σ^-, π . Lorsque la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est « cohérente », l'état angulaire du photon $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$ (plus exactement celui de la partie dipolaire électrique de l'onde plane $\vec{k}_i, \vec{e}_\lambda$) est une superposition linéaire des états $|+1\rangle, |-1\rangle, |0\rangle$. Les photons $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$ ont alors un *moment angulaire transversal* (perpendiculaire à H_0) non nul en moyenne. Il y a là une grande analogie avec ce que nous avons vu plus haut au sujet du moment

angulaire atomique. Le fait que le moment angulaire transversal du photon est non nul en moyenne est lié à l'existence de « cohérences » $a_+ a_-^*$, $a_+ a_0^*$, ...

Une différence importante doit être signalée : les trois états $|+1\rangle$, $|-1\rangle$, $|0\rangle$ du photon ont la même énergie dans un champ magnétique : le moment angulaire transversal du photon ne précesse pas (L'état de polarisation d'un faisceau lumineux n'est pas affecté par un champ magnétique). C'est une constante du mouvement à la différence du moment angulaire transversal de l'atome. La « cohérence » $a_+ a_-^*$ n'a donc pas de mouvement propre. Comme elle évolue à la fréquence zéro, nous parlerons, en faisant un abus de langage qui se révélera très commode par la suite, de *cohérence hertzienne* pour le mode $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$ (nous verrons, en effet, que la « cohérence hertzienne » du champ de rayonnement se transfère au système atomique lors de l'interaction). Les trois propositions suivantes sont donc équivalentes :

- a) La polarisation $\vec{e}_\lambda$ est « cohérente » (superposition linéaire de $\vec{u}_+$, $\vec{u}_0$, $\vec{u}_-$).
- b) Le moment angulaire transversal (perpendiculaire à H_0) du photon est non nul en moyenne.
- c) Le champ de rayonnement possède de la « cohérence hertzienne ».

Remarque. — Tel que nous l'avons défini ici, le caractère longitudinal ou transversal du moment angulaire du photon est lié uniquement à son orientation par rapport au champ magnétique statique H_0 . Ceci n'a rien à voir avec le caractère longitudinal ou transversal de l'onde plane $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$. Nous n'envisageons dans ce travail que des champs de rayonnement libres : l'onde $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$ est toujours transversale ($\vec{k}_i \vec{e}_\lambda = 0$). Par rapport à la direction de propagation $\vec{k}_i$, le moment angulaire du photon ne peut prendre que les deux valeurs $+1$ ou -1 .

5° Le vide de photons. — Avant de terminer ce chapitre, rappelons la définition du « vide de photons ». Cet état particulier du champ de rayonnement qui joue un rôle important en électrodynamique quantique correspond au cas où tous les modes sont dans leur état le plus bas $n = 0$.

Dans un tel état, le nombre de photons du mode $\vec{k}_i, \vec{e}_\lambda$ est bien déterminé puisqu'il est nul. Il s'ensuit que la phase et le champ électromagnétique ne sont plus déterminés. Leur valeur moyenne est nulle. En un point de l'espace, ces grandeurs fluctuent de façon aléatoire, d'où l'origine du terme : *fluctuations du champ électromagnétique du vide*.

Les fluctuations du vide jouent un rôle important car elles couplent l'atome au champ de rayonnement même en l'absence de tout photon. Elles sont responsables

comme nous le verrons plus loin, de nombreux effets radiatifs (largeur naturelle, self-énergie ou « lamb-shift »). Elles sont caractérisées par deux propriétés importantes : a) Leur importance avec l'énergie croît comme k^2 (le nombre de modes distincts d'énergie comprise entre k et $k + dk$ est proportionnel au volume correspondant de l'extension en phase). b) Elles sont isotropes : dans le vide de photons, tous les modes interviennent, avec toutes les directions de propagation $\vec{k}_i$ et toutes les polarisations $\vec{e}_\lambda$ possibles.

C. — Le couplage entre l'atome et le champ de rayonnement

1° Les échanges d'énergie et de moment angulaire longitudinal. — Les éléments de matrice non nuls du hamiltonien $\mathcal{H}_1$ qui décrit le couplage entre l'atome et le champ de rayonnement correspondent à deux types de transitions entre les états de base que nous avons choisis pour les deux systèmes : a) *l'absorption d'un photon* ; l'atome passe de l'état fondamental $|\mu\rangle$ à l'état excité $|m\rangle$ tandis que le mode $\vec{k}_i, \vec{e}_\lambda$ passe de l'état $|n+1\rangle$ à l'état $|n\rangle$; plus schématiquement :

$$|\mu; \vec{k}_i, \vec{e}_\lambda, n+1\rangle \rightarrow |m; \vec{k}_i, \vec{e}_\lambda, n\rangle.$$

b) *l'émission d'un photon*, qui correspond au processus inverse :

$$|m; \vec{k}_i, \vec{e}_\lambda, n\rangle \rightarrow |\mu; \vec{k}_i, \vec{e}_\lambda, n+1\rangle.$$

Les éléments de matrice de $\mathcal{H}_1$ jouant un rôle fondamental dans cette étude, il importe de bien préciser leur forme :

$$\left\langle \mu; \vec{k}_i, \vec{e}_\lambda, n+1 \left| \mathcal{H}_1 \right| m; \vec{k}_i, \vec{e}_\lambda, n \right\rangle = A_{ki} \cdot \mathbf{e}^{i\vec{k}_i \vec{R}} \cdot \left\langle \mu \left| \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} \right| m \right\rangle \quad (I, C, 1)$$

Chacun des trois facteurs :

$$A_{ki}, \mathbf{e}^{-i\vec{k}_i \vec{R}}, \left\langle \mu \left| \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} \right| m \right\rangle$$

de l'expression précédente fait intervenir à la fois l'atome et le champ de rayonnement.

Dans le terme A_{ki} , l'atome intervient par la partie *radiale* de l'élément de matrice de l'opérateur dipolaire électrique entre l'état excité et l'état fondamental. Cette quantité décrit en quelque sorte la « force » de la transition atomique. Dans A_{ki} le champ de rayonnement intervient par l'élément de matrice de l'opérateur de création de photons A_i^+ entre les états n et $n+1$; d'après (I, B, 4), cette quantité est égale à $\sqrt{n+1}$.

Dans le terme $\mathbf{e}^{i\vec{k}_i \vec{R}}$, l'atome intervient par ses degrés

de liberté externes, position et vitesse ($\vec{R} = \vec{R}_0 + \vec{v}t$) qui sont décrits ici classiquement. Quant au champ de rayonnement, il intervient par $\vec{k}_i$. Si $\vec{k}_i \cdot \vec{v} \neq 0$, $e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{R}}$ dépend du temps, ce qui entraîne une variation apparente de la fréquence de l'onde lumineuse, due au mouvement de l'atome. C'est ce terme qui, au cours des calculs, fait apparaître l'effet Doppler.

Enfin, le terme $\langle \mu | \vec{e}_\lambda \vec{D} | m \rangle$ est purement angulaire. $\vec{D}$ est l'opérateur dipolaire électrique de l'atome réduit à sa partie angulaire ; $\vec{e}_\lambda$, la polarisation du champ de rayonnement.

On peut dire en quelque sorte que A_{ki} décrit l'échange d'énergie entre l'atome et le champ de rayonnement ; $\langle \mu | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | m \rangle$ l'échange de moment angulaire longitudinal.

2° Les échanges de « cohérence » entre l'atome et le champ de rayonnement. — Les échanges décrits par l'élément de matrice de $\mathcal{H}_i$ font tous intervenir des grandeurs physiques compatibles avec l'énergie totale. Ceci provient du fait que la représentation choisie pour chacun des deux systèmes est une représentation d'énergie : l'élément de matrice connecte donc deux états propres de l'énergie.

Or, les deux systèmes peuvent également échanger des grandeurs physiques non compatibles avec l'énergie : l'absorption par un atome d'un photon qui possède un moment angulaire transversal confère à cet atome un moment angulaire transversal ; l'excitation d'un atome par une onde lumineuse qui possède une phase définie donne naissance à un moment dipolaire électrique atomique.

Mathématiquement, ces propriétés apparaissent de la façon suivante : considérons tout d'abord un atome qui se trouve dans un sous-niveau μ de l'état fondamental et qui est excité par un photon dont la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est « cohérente » (superposition linéaire de σ_+ , σ_- , π), c'est-à-dire qui possède une certaine « cohérence hertzienne » (cf. I, B, 4). Il existe alors plusieurs éléments de matrice non nuls $\langle m | \vec{e}_\lambda \vec{D} | \mu \rangle$ partant du même sous-niveau μ et aboutissant à plusieurs sous-niveaux m . L'atome, initialement dans un état propre du moment angulaire $|\mu\rangle$ va donc être porté par suite de l'interaction avec le champ de rayonnement dans une superposition linéaire des états $|m\rangle$ (il apparaît une « cohérence hertzienne » atomique), les coefficients de cette superposition étant déterminés par ceux de la superposition $\vec{e}_\lambda$. C'est ainsi qu'apparaît mathématiquement l'échange de moment angulaire transversal (ou encore de cohérence hertzienne).

Nous avons vu de même que l'excitation d'un atome par une onde lumineuse cohérente au sens de l'optique

correspond à un état initial où le champ de rayonnement est dans une superposition linéaire des états $|n\rangle$:

$$\dots a_n |\mu; n\rangle + a_{n+1} |\mu; n+1\rangle + \dots \quad (\text{I, C, 2})$$

Par suite du couplage $\mathcal{H}_i$, cet état se transforme, un instant après, en :

$$\dots a'_n |\mu; n\rangle + a'_{n+1} |\mu; n+1\rangle + a''_n |m; n-1\rangle + a''_{n+1} |m; n\rangle + \dots$$

(l'indice prime est lié à ce qu'il reste de l'état initial, l'indice seconde aux états nouveaux qui apparaissent à partir de cet état initial). L'apparition d'un moment dipolaire électrique atomique est liée à l'apparition des quantités $a'_n a''_{n+1}$ qui sont elles-mêmes déterminées à partir des quantités $a_n a'_{n+1}$. Il y a ici échange de « cohérence optique ».

Dans les deux exemples choisis, la « cohérence » (hertzienne ou optique) existe initialement dans le champ de rayonnement et se transfère par suite du couplage au système atomique. Le cas où la « cohérence » existe initialement dans le système atomique seulement, ou dans les deux systèmes à la fois se traite évidemment de la même façon et à partir des mêmes idées de base.

Insistons bien sur le fait qu'aucun de ces deux types de cohérence, cohérence optique et cohérence hertzienne, ne peut s'échanger avec l'autre. C'est la raison pour laquelle il est commode de les distinguer aussi nettement.

Dans la suite de ce travail, nous nous intéresserons surtout aux échanges de « cohérence hertzienne ». Les fréquences propres d'évolution de cette grandeur sont 0 pour le champ de rayonnement, ω_e et ω_f pour le système atomique. Il en résulte que les échanges de cette grandeur entre les deux systèmes seront d'autant plus faciles que leurs fréquences propres seront plus voisines dans les deux systèmes, c'est-à-dire que le champ magnétique sera plus bas ($\omega_e, \omega_f \sim 0$). Cette image simple d'un échange « résonnant » permet d'interpréter simplement l'ensemble des expériences de pompage optique, où se manifestent des effets qui dépendent du champ magnétique ; ce qui justifie ainsi l'introduction de la notion de « cohérence hertzienne ».

3° L'absorption. L'émission induite. L'émission spontanée. — Considérons un atome qui se trouve en présence de n photons $\vec{k}_i \vec{e}_\lambda$. Si cet atome est dans l'état fondamental, l'état initial $|\mu; n\rangle$ est couplé par $\mathcal{H}_i$ à l'état $|m; n-1\rangle$. Le carré du module de l'élément de matrice entre ces deux états est proportionnel à la probabilité de la transition $|\mu; n\rangle \rightarrow |m; n-1\rangle$. Le facteur angulaire $|\langle \mu | \vec{e}_\lambda \vec{D} | m \rangle|^2$ étant mis à part, on voit que cette probabilité est proportionnelle à $|A_{ki}|^2$, donc à n puisque $|A_{ki}|^2$ renferme la quantité $|\langle n | A_i^+ | n-1 \rangle|^2$ qui, d'après (I, B, 4), est

égale à n . La probabilité pour qu'un atome dans l'état fondamental absorbe un photon lorsqu'il est mis en présence de n photons est donc proportionnelle à ce nombre de photons, c'est-à-dire à l'intensité lumineuse. C'est le processus d'absorption.

Supposons maintenant que l'atome est dans l'état excité m lorsqu'il est mis en présence des n photons $\vec{k}_i e_\lambda$. L'état initial $|m; n\rangle$ est couplé par $\mathcal{H}_1$ à $|\mu; n+1\rangle$. La probabilité de la transition $|m; n\rangle \rightarrow |\mu; n+1\rangle$ est alors proportionnelle à $|\langle n | A_i | n+1 \rangle|^2$ c'est-à-dire à $n+1$. La probabilité pour qu'un atome dans l'état excité émette un photon $\vec{k}_i e_\lambda$ lorsqu'il est mis en présence de n photons $\vec{k}_i e_\lambda$ est donc proportionnelle à $n+1$. On interprète ce résultat en faisant intervenir deux processus : l'émission induite, processus entièrement symétrique du processus d'absorption, qui est proportionnel à n , et par suite à l'intensité lumineuse. L'émission spontanée, qui est indépendante de l'intensité lumineuse, et existe même en l'absence de tout photon. L'importance relative des deux processus est égale au nombre n de photons présents. Ce résultat se généralise facilement au cas où l'état initial du mode $\vec{k}_i, e_\lambda$ n'est pas un état propre $|n\rangle$ mais l'état le plus général (I, B, 1). Il suffit de remplacer partout n par le nombre moyen $\bar{n}$ de photons se trouvant présents dans l'état $|\xi\rangle$.

L'absorption et l'émission induite sont deux processus entièrement symétriques ; ils ne font intervenir que les modes « remplis » ($\bar{n} \neq 0$). L'émission spontanée fait intervenir tous les modes, y compris ceux qui sont vides. C'est un processus entièrement différent des deux autres. C'est ainsi, par exemple, qu'un photon d'émission spontanée peut avoir *a priori* toutes les directions de propagation et toutes les polarisations possibles puisque tous les modes interviennent. Par contre, un photon d'émission induite a les mêmes caractéristiques (énergie, impulsion, polarisation) que les photons qui lui ont donné naissance. On dit que l'émission induite est « cohérente ». On veut dire par là que si on attaque un atome excité par une onde lumineuse cohérente au sens de l'optique, la phase du dipôle électrique atomique induit, et par suite celle de l'onde lumineuse qu'il émet ensuite, sont liées à la phase de l'onde incidente : l'onde d'émission induite et l'onde incidente ont donc une relation de phase et sont susceptibles d'interférer. Cette image « classique » se justifie sans peine dans le formalisme quantique par des calculs analogues à ceux développés dans le paragraphe précédent. L'état initial doit être alors du type :

$$\dots a_n |m; n\rangle + a_{n+1} |m; n+1\rangle + \dots$$

Toutes les propriétés de l'émission spontanée peuvent se retrouver aisément si l'on considère l'émission spontanée comme une *émission induite par les fluctuations du vide*. Nous avons vu en effet plus haut (cf. I, B, 5)

que les fluctuations du vide sont isotropes. Elles ont *a priori* toutes les directions et polarisations possibles. D'autre part, leur phase est complètement indéterminée.

Signalons enfin que le processus d'émission spontanée est responsable d'effets radiatifs très importants et bien connus. C'est en effet l'émission spontanée qui rend instable un niveau atomique excité et qui lui confère une largeur naturelle Γ et une self-énergie ΔE . L'un des principaux résultats du présent travail est de montrer théoriquement et expérimentalement que des effets radiatifs analogues sont également associés aux deux autres processus d'absorption et d'émission induite. Le seul fait d'illuminer un atome peut élargir et déplacer ses niveaux d'énergie. Ces effets sont surtout sensibles sur l'état fondamental qui, n'ayant pas de largeur naturelle, est particulièrement fin.

D. — La description du faisceau lumineux

Avant d'aborder la mise en équations du cycle de pompage optique, il nous reste à préciser la description du faisceau lumineux qui excite la résonance optique des atomes.

D'après (I, B, 1), il faudrait décrire l'état $|\xi\rangle$ dans lequel se trouve chacun des modes du champ de rayonnement. La représentation d'énergie étant choisie, il est évident que les états $|n\rangle$ sont beaucoup plus commodes à manier mathématiquement que les superpositions linéaires $|\xi\rangle$. Aussi le modèle le plus simple qu'on peut choisir pour le faisceau lumineux est le suivant : tous les modes sont dans l'état 0, sauf un certain nombre d'entre eux, $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \dots, \vec{k}_N$ qui sont chacun dans un état propre de l'énergie. $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \dots, \vec{k}_N$ ont tous la même direction et la même polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ qui sont celles du faisceau lumineux. Le nombre N est très grand de sorte qu'on peut admettre une répartition continue du nombre de photons $u(k)dk$ dans l'intervalle $k, k+dk$. $u(k)$ est la forme spectrale de la raie excitatrice. La largeur de $u(k)$ est désignée par Δ . Comme nous avons pris un état propre de l'énergie, l'état global du champ de rayonnement est stationnaire au cours du temps. Il s'ensuit que les photons de chaque mode ont une probabilité de présence uniforme dans le temps et dans l'espace. La phase du champ de rayonnement est par ailleurs complètement indéterminée.

Au premier abord, un tel modèle peut donc paraître très éloigné de la réalité physique. L'image intuitive qu'on se fait d'un faisceau lumineux correspond plutôt à une succession de trains d'ondes arrivant sur l'atome. Il semblerait donc préférable de choisir pour chaque mode un état où la phase ait une valeur déterminée, au moins partiellement. Un train d'ondes résulte en effet de l'interférence entre plusieurs ondes progressives de fréquences légèrement différentes, et la notion d'inter-

férence implique l'existence d'une phase pour chaque onde.

Mais il se trouve qu'un mode ayant une phase déterminée doit avoir également un nombre moyen de photons très grand (en vertu de la relation d'incertitude entre le nombre de photons et la phase). Une telle situation est difficilement réalisable dans le domaine optique. Si nous considérons le rayonnement thermique, le nombre moyen de photons dans le mode k_i est égal à $(e^{k_i/kT} - 1)^{-1}$, c'est-à-dire extrêmement petit. Le rayonnement des sources lumineuses est évidemment beaucoup plus intense que le rayonnement thermique sur un intervalle spectral donné mais le nombre moyen de photons de chaque mode reste toujours petit devant l'unité. On peut donner une preuve expérimentale de ce fait : les effets de fluctuations d'intensité d'un faisceau lumineux découverts par Hanbury-Brown et Twiss (24) sont d'autant plus importants que le nombre moyen de photons de chaque mode est plus grand. Ces effets, intenses dans le domaine hertzien, sont très petits dans le domaine optique même avec les sources lumineuses les plus intenses.

Nous pouvons donc espérer que le modèle le plus simple décrit plus haut n'est pas trop éloigné de la réalité physique. Nous le choisissons en raison de sa grande simplicité. La confirmation expérimentale de tous les effets prévus par la théorie sera une justification *a posteriori* de ce modèle.

Le choix qui est ainsi fait pour la description du faisceau lumineux entraîne plusieurs conséquences importantes :

a) Nous pouvons décrire le faisceau lumineux excitateur uniquement en termes de photons.

b) Les quantités $\sigma_{m\mu}$ sont constamment nulles au cours du temps. La non-existence d'une phase définie dans le faisceau excitateur entraîne la non-existence d'un moment dipolaire électrique global pour l'ensemble des atomes. La matrice densité qui représente cet ensemble se décompose donc en deux sous-matrices $\sigma_{mm'}$ et $\sigma_{\mu\mu'}$ relatives à l'état excité et à l'état fondamental.

c) L'émission induite par le faisceau lumineux est négligeable devant l'émission spontanée. En fait, ceci suppose une condition sur l'intensité lumineuse $u(k)$, condition qui sera précisée plus loin (condition II, D, 4).

Enfin, on fait l'hypothèse suivante sur la largeur Δ de $u(k)$:

$$\Delta \gg \Gamma, \omega_e, \omega_f. \quad (\text{I, D, 1})$$

Γ est la largeur naturelle du niveau atomique excité.

La condition $\Delta \gg \Gamma$ est toujours réalisée dans les cas pratiques (dans le cas du mercure, Γ est de l'ordre du mégahertz ; la largeur Δ des sources excitatrices est de l'ordre de plusieurs milliers de mégahertz). On pourrait s'affranchir de la condition $\Delta \gg \omega_e, \omega_f$ au prix d'une complication de l'écriture des équations.

Remarque. — Le modèle choisi ici peut convenir à toutes les expériences de pompage optique réalisées jusqu'à présent. L'utilisation d'un « laser » (31) pour effectuer le pompage optique pose un problème théorique et expérimental entièrement nouveau. Les faisceaux lumineux obtenus avec une telle source ont des caractéristiques très intéressantes et assez opposées de celles qui sont décrites ici : densité de photons très élevée et répartie sur un intervalle spectral extrêmement étroit ; existence d'une phase bien définie pour l'onde lumineuse ; très grande directivité. Les états des modes remplis ne sont alors certainement pas des états propres de l'énergie, $|n\rangle$. La condition (I, D, 1) est également inversée.

L'étude théorique et expérimentale du pompage optique sera certainement très intéressante à reprendre avec ces nouvelles sources lumineuses. On peut prévoir dès à présent que le phénomène de résonance optique aura une allure très différente de celle dont nous avons l'habitude : à savoir deux processus indépendants, l'excitation optique et l'émission spontanée, séparés par le temps de vie de l'état excité. Le comportement de l'atome sera beaucoup plus voisin de celui d'un spin soumis à l'action d'un champ de radiofréquence.

CHAPITRE II

PRÉSENTATION DES RÉSULTATS THÉORIQUES

Introduction. — Nous pouvons aborder maintenant la théorie du cycle de pompage optique. Plusieurs modes de présentation peuvent être choisis pour une telle étude.

On peut, et c'est ce qui est fait dans J — P1 (4) et J — P2 (5), suivre l'ordre des calculs eux-mêmes. On part de l'équation de Schrödinger qui décrit l'évolution dans le temps du système : atome + champ de rayonnement ; on résout de façon approchée cette équation

en lui appliquant des techniques de perturbations ; les approximations faites et les résultats obtenus sont interprétés au fur et à mesure de la progression des calculs.

Lorsqu'on veut justifier mathématiquement les résultats théoriques, un tel plan est le seul qui convienne. Mais il se trouve, et c'est ce que nous ferons ici, que l'on peut procéder autrement. On peut regarder la structure des équations finales auxquelles le calcul permet d'aboutir.

tir, et l'interpréter en termes d'images physiques. Un exemple : comme nous allons le voir, on peut considérer que l'évolution d'un atome dans le temps apparaît comme une suite alternée de processus d'absorption et d'émission spontanée séparés par des périodes d'évolution propre, chacun de ces processus pouvant être décrit de façon indépendante. Ces conclusions ne sont valables que dans le cadre des hypothèses faites dans le calcul et qui seront précisées.

L'intérêt d'une telle présentation est double : elle permet, d'une part, de dégager les idées importantes qui serviront ensuite de base à l'interprétation physique des différents phénomènes. Elle permet d'autre part d'introduire une certaine systématique dans l'écriture des équations qui décrivent l'évolution dans le temps du système atomique et du champ de rayonnement.

Le détail des calculs ayant déjà été publié, il nous a semblé plus intéressant d'adopter ici ce second point de vue.

A. — Les grandes lignes du calcul théorique

1° Les trois étapes du cycle de pompage optique.

— Trois étapes sont à distinguer dans le cycle de pompage optique. A chacune de ces trois étapes sont associés des états de base pour le système global : atome + champ de rayonnement.

1^{re} étape.

L'atome est dans le sous-niveau μ de l'état fondamental, en présence du faisceau lumineux. Les états de base correspondants sont, avec les notations définies dans le chapitre 1^{er}, § D :

$$|\mu; \vec{k}_1, \vec{k}_2 \dots \vec{k}_N, \vec{e}_{\lambda_0}\rangle$$

ou, plus simplement $|\mu\rangle$.

2^e étape.

L'atome est dans le sous-niveau m de l'état excité ; un photon $\vec{k}_i, \vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau lumineux a été absorbé, ce qui fait intervenir les états :

$$|m; \vec{k}_1 \dots \vec{k}_{i-1}, \vec{k}_{i+1} \dots \vec{k}_N, \vec{e}_{\lambda_0}\rangle$$

ou, plus simplement $|m; -\vec{k}_i\rangle$.

(Pour simplifier les notations, nous supposons ici que les modes remplis $\vec{k}_1 \dots \vec{k}_N$ ne renferment qu'un photon chacun).

3^e étape.

L'atome est dans le sous-niveau μ de l'état fondamental ; un photon $\vec{k}_i, \vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau lumineux a été absorbé, un photon $\vec{k}, \vec{e}_{\lambda}$, réémis, ce qui fait intervenir les états :

$$|\mu; \vec{k}_1 \dots \vec{k}_{i-1}, \vec{k}_{i+1} \dots \vec{k}_N, \vec{e}_{\lambda_0}; \vec{k}, \vec{e}_{\lambda}\rangle$$

ou, plus simplement $|\mu; -\vec{k}_i; \vec{k}, \lambda\rangle$.

(Les états correspondants à l'émission induite par le faisceau lumineux sont négligés en vertu de la remarque *c* du § I, D).

Remarque. — Il faudrait, en toute rigueur, tenir compte de tous les états qui correspondent à plusieurs cycles de pompage successifs et qui sont, par exemple, du type :

$$|m; -\vec{k}_i; \vec{k}, \lambda; -\vec{k}_j\rangle, |\mu; -\vec{k}_i; \vec{k}, \lambda; -\vec{k}_j; \vec{k}', \lambda'\rangle, \text{ etc...}$$

Nous pouvons négliger ces états, parce que nous utilisons une théorie des perturbations limitée au second ordre pour résoudre l'équation de Schrödinger ; et que, d'autre part, l'état initial à l'instant t_0 est une superposition linéaire, uniquement des états $|\mu\rangle$.

Les équations d'évolution auxquelles nous aboutissons ne sont donc, en principe, valables que pour des temps t suffisamment rapprochés de t_0 . Il est néanmoins possible de démontrer, ce que nous ferons plus loin, que ces équations demeurent valables pour toutes les valeurs de t .

2° L'évolution dans le temps. — L'évolution dans le temps du vecteur d'état du système global est décrite par l'équation de Schrödinger :

$$i \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = \mathcal{H} |\Psi(t)\rangle. \quad (\text{II, A, 1})$$

Le hamiltonien $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$ comporte deux termes : $\mathcal{H}_0$, qui représente les énergies propres des deux systèmes en l'absence de toute interaction ; $\mathcal{H}_1$, qui représente l'interaction entre les deux systèmes. Le rapport $\mathcal{H}_1/\mathcal{H}_0$ est petit (La constante de couplage $\frac{e^2}{\hbar c}$ de l'électrodynamique quantique est égale à 1/137). La faiblesse de ce couplage permet de traiter $\mathcal{H}_1$ comme une perturbation dans (II, A, 1).

L'état initial, à l'instant $t = t_0$ est représenté par :

$$|\Psi(t_0)\rangle = \sum_{\mu} a_{\mu}(t_0) |\mu\rangle. \quad (\text{II, A, 2})$$

Par suite du couplage avec $\mathcal{H}_1$, cet état est devenu à un instant t suffisamment rapproché de t_0 :

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{\mu} a_{\mu}(t) |\mu\rangle + \sum_{m,i} a_{m;-\vec{k}_i}(t) |m; \vec{k}_i\rangle + \sum_{\mu,i,\vec{k},\lambda} a_{\mu;-\vec{k}_i;\vec{k},\lambda}(t) |\mu; -\vec{k}_i; \vec{k}, \lambda\rangle \quad (\text{II, A, 3})$$

Le problème consiste à calculer les $a_{\mu}(t)$, $a_{m;-\vec{k}_i}(t)$, $a_{\mu;-\vec{k}_i;\vec{k},\lambda}(t)$ qui décrivent l'état du système global à l'instant t .

De façon plus précise, si nous nous intéressons *uni-*

quement au système atomique, il nous faut calculer les trois matrices densités $a_{\mu}(t)a_{\mu'}^*(t)$, $\sum_i a_{m_i; -\vec{k}_i}(t)a_{m'_i; -\vec{k}_i}^*(t)$, $\sum_{ik\lambda} a_{\mu_i; -\vec{k}_{i\lambda}}(t)a_{\mu'_i; -\vec{k}_{i\lambda}}^*(t)$, obtenues en faisant la moyenne sur les atomes identiques de la vapeur et en sommant sur tous les photons absorbés ou réémis. A l'instant t , l'ensemble des atomes dans l'état fondamental et dans l'état excité est décrit par les deux matrices densités $\sigma_{\mu\mu'}(t)$ et $\sigma_{mm'}(t)$:

$$\begin{cases} \sigma_{mm'}(t) = \sum_i a_{m_i; -\vec{k}_i}(t)a_{m'_i; -\vec{k}_i}^*(t) \\ \sigma_{\mu\mu'}(t) = a_{\mu}(t)a_{\mu'}^*(t) + \sum_{ik\lambda} a_{\mu_i; -\vec{k}_{i\lambda}}(t)a_{\mu'_i; -\vec{k}_{i\lambda}}^*(t) \end{cases} \quad (\text{II, A, 4})$$

Le comportement de toutes les grandeurs atomiques est calculable à partir de ces deux matrices densités.

3° Le résultat final du calcul. — La résolution approchée de (II, A, 1) par les méthodes de perturbation du 2^e ordre qui sont exposées dans J — P1 et J — P2, permet de calculer la *vitesse d'évolution*, à l'instant t , des deux matrices densités (II, A, 4) :

$$\frac{d}{dt} \sigma_{\mu\mu'}(t), \frac{d}{dt} \sigma_{mm'}(t).$$

Le même traitement permet également de calculer les quantités de lumière absorbée, L_A , ou réémise, L_F , par unité de temps par l'ensemble des atomes.

Les détecteurs qui permettent de mesurer ces quantités sont des cellules photoélectriques ou des photomultiplicateurs. La sensibilité spectrale de ces appareils varie peu au voisinage de la fréquence atomique k_0 . Aussi, les quantités L_A et L_F comportent également une moyenne sur l'énergie des photons absorbés ou réémis.

(Les expressions détaillées auxquelles on parvient seront rappelées dans les chapitres ultérieurs).

Remarque. — Il existe une autre façon de conduire le calcul précédent qui nous a été signalée par M. Yvon :

L'équation de Schrödinger (II, A, 1) est écrite directement pour la matrice densité globale qui représente l'ensemble des deux systèmes : atomes plus champ de rayonnement. On suppose qu'à l'instant initial, il n'y a pas de corrélations entre les deux systèmes. Si l'on s'intéresse au système atomique, on étudie l'évolution dans le temps de la « matrice densité réduite » obtenue en prenant la trace par rapport au champ de rayonnement de la matrice densité globale (Si l'on s'intéresse au champ de rayonnement, il faut prendre la trace par rapport au système atomique). Cette méthode générale s'appelle « méthode régressive » (32) et s'applique avec succès à tous les cas où le système étudié peut être décomposé en deux parties (33).

Les calculs développés dans J — P1 et J — P2 suivent d'ailleurs ce plan général. L'emploi systématique de la matrice densité, dès le début des calculs, devrait permettre de les présenter sous une forme beaucoup plus concise et beaucoup plus élégante.

B. — Étude de la forme générale des équations d'évolution

1° Les équations d'évolution. — On trouve finalement que les équations qui décrivent l'évolution dans le temps de $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$ ont la forme suivante :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \sigma_{\mu\mu'} = \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} + \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} + \frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} & (\text{II, B, 1, a}) \\ \frac{d}{dt} \sigma_{mm'} = \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{mm'} + \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{mm'} + \frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{mm'} & (\text{II, B, 1, b}) \end{cases}$$

L'évolution dans le temps de l'état fondamental (ou de l'état excité) de l'atome comprend trois sortes de termes que l'on peut attribuer à trois causes différentes.

- L'excitation optique par le faisceau lumineux (décrite par $\frac{d^{(1)}}{dt}$).
- L'émission spontanée (décrite par $\frac{d^{(2)}}{dt}$).
- Les causes d'évolution autres que l'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement (décrites par $\frac{d^{(3)}}{dt}$).

Envisageons ce dernier terme. Parmi les causes d'évolution qui figurent dans $\frac{d^{(3)}}{dt}$, il y a toujours l'interaction entre l'atome et le champ magnétique statique H_0 . S'il n'y en a pas d'autres, $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$ et $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{mm'}$ s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} = -i(\mu - \mu')\omega_f \sigma_{\mu\mu'} \\ \frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{mm'} = -i(m - m')\omega_e \sigma_{mm'} \end{cases} \quad (\text{II, B, 2})$$

Ces équations décrivent la précession de Larmor du moment angulaire transversal dans l'état fondamental et dans l'état excité.

Remarque. — Nous écrivons ici les matrices densités $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$ dans la représentation du laboratoire. Dans J — P1 et J — P2, elles sont écrites en représentation d'interaction et désignées alors par $\rho_{\mu\mu'}$ et $\rho_{mm'}$. Le passage en représentation d'interaction permet d'éliminer la variation propre du système atomique due aux causes d'évolution autres que l'interaction avec le champ de rayonnement. Les termes $\frac{d^{(3)}}{dt} \rho_{\mu\mu'}$

et $\frac{d^{(3)}}{dt} \rho_{mm'}$ n'existent plus pour les équations (II, B, 1) lorsqu'elles sont écrites pour $\rho_{\mu\mu'}$ et $\rho_{mm'}$.

La représentation du laboratoire est donc moins commode sur le plan mathématique. Par contre, elle permet de dégager beaucoup plus clairement la signification physique des différents résultats. Nous l'utiliserons ici de façon systématique. Le passage d'une représentation à l'autre se fait au moyen des formules :

$$\begin{cases} \sigma_{\mu\mu'}(t) = \rho_{\mu\mu'}(t) e^{-i(\mu - \mu')\omega_f t} \\ \sigma_{mm'}(t) = \rho_{mm'}(t) e^{-i(m - m')\omega_e t} \end{cases} \quad (\text{II, B, 3})$$

— Les équations qui décrivent les effets de l'excitation optique et de l'émission spontanée ont la forme suivante :

$$\begin{cases} \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} = \sum_{\mu''\mu'''} E_{\mu\mu'}^{\mu''\mu'''} \sigma_{\mu''\mu'''} & (\text{II, B, 4, a}) \\ \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{mm'} = \sum_{\mu\mu'} E_{mm'}^{\mu\mu'} \sigma_{\mu\mu'} & (\text{II, B, 4, b}) \\ \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{mm'} = \sum_{m''m'''} S_{mm'}^{m''m'''} \sigma_{m''m'''} & (\text{II, B, 5, a}) \\ \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} = \sum_{mm'} S_{\mu\mu'}^{mm'} \sigma_{mm'}. & (\text{II, B, 5, b}) \end{cases}$$

Les divers coefficients E et S qui figurent dans ces équations sont des coefficients CONSTANTS. Nous ne précisons pas davantage leur forme pour le moment puisque l'étude détaillée des équations (II, B, 4) et (II, B, 5) sera faite dans le chapitre III. Nous désirons maintenant souligner quelques points importants liés à la forme même de ces équations.

2° Propriétés des équations d'évolution. — a) Le point le plus important est le fait que la vitesse de variation du système atomique due au couplage avec le champ de rayonnement peut être dissociée de l'évolution propre $\frac{d^{(3)}}{dt}$ et mise sous la forme d'une somme de

deux vitesses de variation $\frac{d^{(1)}}{dt}$ et $\frac{d^{(2)}}{dt}$ que l'on peut attribuer à chacun des deux processus élémentaires d'interaction qui interviennent au cours du cycle de pompage optique : l'absorption d'un photon du faisceau lumineux (représentée par l'indice 1) ; l'émission spontanée (représentée par l'indice 2).

b) Les équations d'évolution sont des équations différentielles et non des équations intégrodifférentielles. Il s'ensuit, par exemple, que la vitesse de variation de $\sigma_{\mu\mu'}$ à l'instant t , due au pompage optique dépend de l'état du système atomique, $\sigma_{\mu''\mu'''}$ et $\sigma_{mm'}$, au même instant t , et non pas de toute « l'histoire » de ce système entre l'instant initial t_0 et t .

c) Les équations (II, B, 4) et (II, B, 5) sont des équations différentielles linéaires, à coefficients constants.

On peut donc parler de *probabilités par unité de temps* associées aux processus élémentaires 1 et 2.

Pour des raisons d'homogénéité, les coefficients E et S qui figurent dans les équations (II, B, 4) et (II, B, 5) sont homogènes à l'inverse d'un temps. L'ordre de

grandeur des coefficients E est $\frac{1}{T_p}$, où T_p est, de façon intuitive, la durée de vie de l'état fondamental, ou encore l'intervalle de temps moyen séparant l'absorption successive de deux photons par le même atome. Quant aux coefficients S, leur ordre de grandeur est $1/\tau$, où τ est la durée de vie radiative de l'état excité.

Remarque. — Comme elles sont obtenues à partir d'un traitement de perturbation du second ordre, les équations (II, B, 1) ne sont en principe valables que pour des instants t suffisamment rapprochés de t_0 , de façon plus précise, pour $t_0 \leq t \leq t_0 + T_p$.

Mais nous venons de voir que ces équations différentielles sont linéaires et à coefficients constants : les propriétés de l'évolution du système atomique à l'instant t ne dépendent donc pas de cet instant t . Il s'ensuit que les équations (II, B, 1) sont valables pour toutes les valeurs de t , en particulier pour $t > t_0 + T_p$, à la condition toutefois que les caractéristiques du faisceau lumineux aient très peu changé entre l'instant initial t_0 et l'instant t . Nous supposons que cela est vrai et que le faisceau lumineux constitue un très grand réservoir qui est très peu affecté par le couplage avec la vapeur atomique (dans la réalité physique, il est constamment « régénéré » par la source lumineuse, ce qui justifie l'hypothèse précédente).

C. — Conséquences physiques de la forme des équations d'évolution

1° Description physique de l'évolution dans le temps. — Après avoir analysé la forme mathématique des équations d'évolution, il est possible de donner une image physique simple de l'évolution dans le temps d'un atome donné. Il est clair que cette image n'est valable que dans le cadre des hypothèses qui permettent d'aboutir aux équations écrites plus haut. Comme nous allons le voir, c'est l'image communément admise et considérée comme intuitive (En fait, elle n'est pas le moins du monde évidente. Elle serait fausse dans l'hypothèse d'une excitation par un laser).

L'excitation optique arrache les atomes de l'état fondamental et les transporte dans l'état excité. L'équation (II, B, 4, a) décrit comment l'état fondamental est vidé par ce processus (l'état fondamental figure dans les deux membres de l'équation). L'équation (II, B, 4, b) décrit comment l'état excité est rempli à partir de l'état fondamental lors de ce processus (l'état excité et l'état fondamental figurent séparément dans les deux membres de l'équation). Les mêmes commentaires peuvent

être faits à propos des équations (II, B, 5); l'équation (II, B, 5, a) décrivant comment l'état excité est vidé par le processus d'émission spontanée; l'équation (II, B, 5, b) décrivant comment l'état fondamental est rempli à partir de l'état excité par suite de ce même processus.

Lorsque l'atome est dans l'état fondamental, il a donc une certaine probabilité $\frac{1}{T_p}$ par unité de temps de passer dans l'état excité sous l'effet du processus d'excitation 1. Lorsqu'il est dans l'état excité, il a une certaine probabilité $1/\tau$ de retourner à l'état fondamental sous l'effet du processus d'émission spontanée 2.

Il s'ensuit que son évolution dans le temps peut être représentée schématiquement par la ligne brisée de la figure 3.

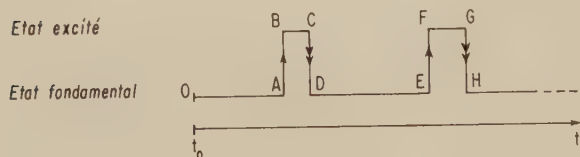


FIG. 3.

Il est intéressant de traduire physiquement sur cette figure les propriétés mathématiques *a*, *b*, *c*, énoncées dans le paragraphe précédent :

a) Les processus responsables de l'évolution de l'atome :

1° le long des lignes verticales marquées d'une flèche, du type AB, EF, ... (processus d'absorption $\frac{d^{(1)}}{dt}$);

2° le long des lignes verticales marquées de deux flèches, du type CD, GH, ... (processus d'émission spontanée $\frac{d^{(2)}}{dt}$);

3° le long des lignes horizontales OA, BC, DE, FG, ... (évolution propre $\frac{d^{(3)}}{dt}$) agissent de façon indépendante sur l'atome.

b) L'évolution de l'atome le long d'une transition verticale dépend uniquement de l'état de l'atome au point de départ de la transition.

L'évolution le long de AB (ou GH) dépend ainsi uniquement de l'état de l'atome au point A (ou G). On peut donc parler de propriétés instantanées associées aux processus 1 et 2.

c) Ces propriétés instantanées sont décrites par les coefficients E et S. Comme E et S ne dépendent pas du temps, il s'ensuit que les propriétés des processus d'absorption et d'émission spontanée sont *intrinsèques* et restent les mêmes pour toutes les transitions du type AB, EF ... ou CD, GH, ...

2° Plan choisi pour l'interprétation physique des résultats théoriques. — Ces simples considérations suffisent à dégager clairement l'idée importante qui doit servir de base à une étude synthétique du pompage optique :

Ce qu'il y a de commun à toutes les expériences de pompage optique, ce sont les propriétés *instantanées* et *intrinsèques* des deux processus élémentaires d'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement, l'absorption d'un photon de résonance optique et l'émission spontanée (parties verticales de la figure 3). Ce qui *varie* d'une expérience à l'autre, c'est l'évolution propre du système atomique entre deux processus élémentaires d'interaction (parties horizontales de la figure 3).

Cette idée impose alors de façon très naturelle le plan que nous suivrons au chapitre III pour interpréter physiquement les résultats théoriques :

a) Plutôt que d'étudier directement les équations d'évolution globales (II, B, 1), nous commencerons par étudier les groupes d'équations (II, B, 4) et (II, B, 5). On dégage ainsi les propriétés importantes qui se retrouvent dans toutes les expériences de pompage optique. C'est ce que nous ferons dans les parties A et B du chapitre suivant.

Au groupe des deux équations (II, B, 4), nous ajouterons d'ailleurs l'expression donnant la quantité de lumière L_A absorbée par unité de temps; au groupe d'équations (II, B, 5) l'expression donnant la quantité de lumière L_E émise par unité de temps. En effet, l'absorption et l'émission d'énergie lumineuse doivent être respectivement associées aux deux processus 1 et 2. Chacun de ces deux processus se trouve ainsi décrit par un groupe de trois équations qui expriment l'effet instantané de ce processus, sur l'état fondamental de l'atome, sur l'état excité de l'atome et sur le champ de rayonnement.

Nous étudierons en détail chacun de ces deux groupes de trois équations. Toutes leurs propriétés seront analysées et interprétées à partir de lois physiques très simples : nous montrerons que l'énergie, le moment angulaire doivent être conservés globalement au cours des transitions verticales de la figure 3.

b) Une fois cette étude de base faite, il est beaucoup plus facile ensuite d'aborder l'analyse des équations d'évolution globales (II, B, 1). Il faut alors tenir compte de l'évolution propre de l'atome $\frac{d^{(3)}}{dt}$ entre deux processus élémentaires d'interaction (Dans ce travail, nous envisageons essentiellement comme causes d'évolution propre, l'interaction avec le champ magnétique statique H_0 et, éventuellement, l'interaction avec un champ de radiofréquence). C'est cette analyse de l'évolution globale que nous présenterons dans les parties C et D du chapitre III.

C'est à ce stade de l'étude qu'apparaît de façon frappante la différence entre le comportement du moment angulaire longitudinal de l'atome et celui du moment

angulaire transversal : tant qu'on étudie les propriétés instantanées de l'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement, on ne rencontre aucune différence importante entre le comportement de ces deux grandeurs physiques. Le long des lignes verticales de la figure 3, il y a entre l'atome et le photon un échange de moment angulaire aussi bien longitudinal que transversal. Par contre, le long des lignes horizontales, l'une de ces grandeurs, le moment angulaire longitudinal, n'évolue pas tandis que le moment angulaire transversal de l'atome évolue, par suite de la précession de Larmor.

3° Utilité pratique du mode de présentation choisi. — Comme nous l'avons signalé plus haut, le mode de présentation choisi présente un intérêt pratique.

Si l'on veut interpréter quantitativement une expérience de pompage optique donnée, le seul problème qui reste à résoudre est celui du calcul des quantités $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$ et $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{mm'}$. Une fois ces expressions calculées, il faut les ajouter aux expressions $\frac{d^{(1)}}{dt}$ et $\frac{d^{(2)}}{dt}$ données dans le présent travail et résoudre le système différentiel (II, B, 1).

Nous verrons plus loin que les signaux de détection optique L_A et L_F s'expriment très simplement à partir de $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$. Une fois le système (II, B, 1) résolu, on peut donc calculer les signaux optiques et par suite interpréter quantitativement l'expérience envisagée.

Il est donc ainsi possible d'introduire une certaine « systématique » dans la façon de conduire le calcul quantitatif d'une expérience de pompage optique.

D. — Conditions de validité de la théorie

Toutes les propriétés que nous venons de mettre en évidence et qui sont liées à la forme des équations d'évolution ne sont évidemment valables que si certaines conditions de validité sont remplies. La liste en est la suivante.

1° Conditions de validité. — *a)* Hypothèses faites sur le faisceau lumineux.

— L'onde lumineuse qui excite la résonance optique des atomes n'a pas de phase définie. On peut ignorer la « cohérence optique » entre l'état fondamental et l'état excité de l'atome :

$$\sigma_{m\mu}(t) \equiv 0. \quad (\text{II, D, 1})$$

— Δ , largeur de la raie excitatrice, est grande devant la largeur naturelle Γ du niveau excité (Γ est l'inverse de la durée de vie radiative τ du niveau excité ; $\Gamma = 1/\tau$) :

$$\Delta \gg \Gamma. \quad (\text{II, D, 2})$$

— Δ est grand devant les effets Zeeman ω_e et ω_f de l'état fondamental et de l'état excité.

$$\Delta \gg \omega_e, \omega_f. \quad (\text{II, D, 3})$$

— L'intensité lumineuse est suffisamment faible pour que l'émission induite et l'absorption provoquées par le faisceau lumineux soient des processus très faibles devant l'émission spontanée.

Ceci entraîne que la durée de vie T_p de l'état fondamental est longue devant la durée de vie τ de l'état excité :

$$\Gamma \gg \frac{1}{T_p}. \quad (\text{II, D, 4})$$

b) Hypothèses faites lors de la résolution approchée de l'équation de Schrödinger.

— Les équations (II, B, 4) qui décrivent l'évolution sous l'effet du processus d'excitation optique sont établies moyennant la condition :

$$\Delta \gg \frac{1}{T_p}. \quad (\text{II, D, 5})$$

(Cette condition est réalisée si (II, D, 2) et (II, D, 4) le sont).

— Quant aux équations (II, B, 5) qui décrivent l'évolution sous l'effet du processus d'émission spontanée, elles sont valables si la largeur naturelle Γ est petite devant l'énergie optique k_0 de la transition, ce qui est très largement réalisé :

$$k_0 \gg \Gamma. \quad (\text{II, D, 6})$$

Remarque. — Il nous paraît important de rappeler comment s'introduit la condition $\Delta \gg \frac{1}{T_p}$ lors de l'établissement des équations (II, B, 4).

L'expression donnant $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$ comporte des quantités du type :

$$\int_0^\infty u(k) dk \int_{t_0}^t e^{ik(t-t')} \sigma_{\mu''\mu'''}(t') dt'$$

($u(k)$ est la forme spectrale de la raie excitatrice, dont la largeur est Δ). Pour faire le calcul d'une telle quantité, on procède de la façon suivante : on commence par se fixer une certaine valeur de $t - t'$ et à faire l'intégration sur k . L'exponentielle $e^{ik(t-t')}$ est alors une fonction oscillante de k , dont la périodicité est $\frac{1}{t - t'}$. Si

$\frac{1}{t - t'}$ est très petit devant la largeur Δ de $u(k)$, l'exponentielle oscille un très grand nombre de fois sur l'intervalle où $u(k)$ est différent de zéro et varie lentement ; l'intégrale du produit de ces deux fonctions est alors nulle. Les seules valeurs de $t - t'$ qui interviennent

dans le calcul de la double intégrale sont donc celles pour lesquelles :

$$t - t' \lesssim \frac{1}{\Delta}.$$

Comme $\sigma_{\mu''\mu'}(t')$ varie avec des constantes de temps de l'ordre de T_p , il s'ensuit que si $T_p \gg \frac{1}{\Delta}$, $\sigma_{\mu''\mu'}(t')$ peut être remplacé par $\sigma_{\mu''\mu'}(t)$ et sorti de l'intégrale. L'équation intégrale-différentielle est ainsi remplacée par une équation différentielle.

Des calculs très analogues se rencontrent lors de l'étude des équations (II, B, 5) qui décrivent l'effet du processus d'émission spontanée. $u(k)$ est alors remplacé par la fonction k^2 qui est en quelque sorte la répartition spectrale énergétique des fluctuations du vide (voir I, B, 5). Ce qui joue le rôle de Δ , c'est alors k_0 qui est, de façon très approchée, la « largeur » de la fonction k^2 au voisinage du point k_0 . D'où l'origine de la condition (II, D, 6).

2° Signification physique des conditions de validité.

dité. — La remarque précédente montre que $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$ dépend en fait des valeurs de $\sigma_{\mu''\mu'}(t')$ pour $t - \frac{1}{\Delta} \leq t' \leq t$. Elle conduit donc à penser que la *durée effective d'un processus d'absorption* est $\frac{1}{\Delta}$. Cette idée est d'ailleurs très bien confirmée par l'image classique des trains d'onde. En effet, si Δ est la largeur de la répartition spectrale énergétique, l'extension du train d'onde dans l'espace est $\frac{1}{\Delta}$, et le temps mis par ce train d'onde à passer devant l'atome est bien $\frac{1}{\Delta}$ (rappelons que nous avons pris $\hbar = c = 1$). On est de même conduit à penser que la durée effective d'un processus d'émission spontanée est de l'ordre de $\frac{1}{k_0}$.

Insistons bien sur le fait qu'il ne faut pas confondre la durée effective d'un processus avec l'inverse de la probabilité par unité de temps pour qu'un tel processus ait lieu. Ainsi, T_p est le temps moyen au bout duquel un processus d'absorption a une très grande chance de s'être produit ; $\frac{1}{\Delta}$ le temps effectif que dure un tel processus lorsqu'il se produit.

Cette interprétation physique de la quantité $\frac{1}{\Delta}$ permet alors de comprendre très clairement la plupart des conditions de validité de la théorie : elles expriment que les durées effectives des processus d'absorption et d'émission spontanée sont très courtes devant tous les autres temps du problème (ces temps sont T_p et $\frac{1}{\omega_f}$ pour l'état fondamental ; $\tau = \frac{1}{\Gamma}$ et $\frac{1}{\omega_e}$ pour l'état excité).

On peut alors considérer ces processus comme instantanés. En d'autres termes, sur la figure 3, les transitions dues aux processus 1 et 2 sont réellement bien verticales dans l'échelle des temps choisie.

3° Domaine d'application de la présente théorie.

— Nous signalerons tout d'abord que la condition (II, D, 3) $\Delta \gg \omega_e$, ω_f n'est pas essentielle. On peut s'en affranchir aisément. Les diverses équations conservent la même forme. La seule différence est que les coefficients E qui figurent dans les équations (II, B, 4) dépendent alors de ω_e et ω_f , ce qui n'est pas le cas lorsque la condition (II, D, 3) est réalisée. Ceci se comprend d'ailleurs facilement. Il faut alors tenir compte de la variation de l'intensité lumineuse excitatrice d'une composante Zeeman de la raie de résonance à l'autre.

En ce qui concerne les conditions (II, D, 2), (II, D, 4), (II, D, 5) et (II, D, 6), elles sont largement réalisées dans toutes les expériences de pompage optique. La seule difficulté provient de la condition (II, D, 1). Le modèle choisi pour le faisceau lumineux permet d'ignorer complètement la phase de l'onde lumineuse et, par suite, le dipôle électrique global de la vapeur atomique. Pour justifier un tel modèle, très commode sur le plan mathématique, nous avons indiqué que la phase des ondes lumineuses fournies par les sources usuelles était très mal déterminée. Mais nous ne démontrons pas rigoureusement que l'erreur commise en supposant qu'elle est *complètement* indéterminée est négligeable. La seule justification de ce point précis est fournie par le fait que toutes les prévisions théoriques concordent avec l'expérience.

Il nous semble que le prolongement normal d'une telle étude consisterait à reprendre la théorie du cycle de pompage optique en supposant inversées toutes les conditions précédentes, en particulier, les conditions (II, D, 1), (II, D, 2) et (II, D, 4).

CHAPITRE III

INTERPRÉTATION PHYSIQUE DES RÉSULTATS THÉORIQUES

A. — Étude du processus d'absorption

1^o Résultats théoriques. — Comme nous l'avons souligné dans le chapitre précédent, les propriétés instantanées et intrinsèques du processus d'absorption sont décrites par le groupe d'équations (II, B, 4) et par l'expression donnant L_A . En explicitant les coefficients $E_{\mu\mu'}^{(1)}$ et $F_{mm'}^{(1)}$, il vient :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} = - \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \sum_{\mu''} A_{\mu\mu''} \sigma_{\mu''\mu'} - \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) \sum_{\mu''} \sigma_{\mu\mu''} A_{\mu''\mu'} \quad (\text{III, A, 1, a})$$

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{mm'} = \frac{1}{T_p} \sum_{\mu, \mu'} \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu' | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m' \rangle \sigma_{\mu\mu'} \quad (\text{III, A, 1, b})$$

$$L_A = \frac{1}{T_p} \sum_{\mu, \mu'} A_{\mu\mu'} \sigma_{\mu'\mu}. \quad (\text{III, A, 1, c})$$

Les deux premières équations qui représentent l'effet instantané du processus d'absorption sur l'état fondamental et sur l'état excité de l'atome sont tirées des formules (II, 13) et (II, 18) de J — P1.

La troisième équation s'obtient de façon très simple à partir des deux autres. On écrit que le nombre de photons absorbés dans le temps dt est égal au nombre d'atomes qui quittent l'état fondamental dans l'intervalle de temps dt , c'est-à-dire $-\sum_{\mu} \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu}$; ou encore au nombre de ceux qui arrivent dans l'état excité au cours du même temps $\sum_m \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{mm}$.

L'expression des quantités $\frac{1}{2T_p}$, $\Delta E'$, $A_{\mu\mu'}$ qui apparaissent dans les formules (III, A, 1) est la suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{2T_p} = \int_0^{+\infty} u(k) |A_k|^2 dk \frac{\Gamma/2}{[k - (\tilde{k}_0 + \vec{k}_0 \vec{\nu})]^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{III, A, 2, a}) \\ \Delta E' = \int_0^{+\infty} u(k) |A_k|^2 dk \frac{k - (\tilde{k}_0 + \vec{k}_0 \vec{\nu})}{[k - (\tilde{k}_0 + \vec{k}_0 \vec{\nu})]^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{III, A, 2, b}) \\ A_{\mu\mu'} = \sum_m \langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m \rangle \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu' \rangle \quad (\text{III, A, 2, c}) \end{array} \right.$$

On a par ailleurs :

$$\tilde{k}_0 = k_0 + \Delta E \quad (\text{III, A, 3})$$

Γ et ΔE sont la largeur naturelle et la self-énergie du niveau excité.

2^o Effets du processus d'absorption sur l'état fondamental de l'atome. — L'équation (III, A, 1, a) décrit la façon dont se vide un état fondamental possédant de la « cohérence hertzienne » $\sigma_{\mu\mu'}$ par suite du processus d'absorption. Les quantités $\sigma_{\mu\mu'}$ sont au nombre de $(2I + 1)^2$. L'équation (III, A, 1, a) est donc, en fait, un système différentiel linéaire à coefficients constants par rapport aux $(2I + 1)^2$ quantités $\sigma_{\mu\mu'}$.

Il s'ensuit que la description du processus d'absorption nécessite plusieurs constantes de temps qui sont les valeurs propres de la matrice associée à ce système différentiel linéaire. Nous allons, par une transformation simple sur l'équation (III, A, 1, a) faire apparaître ces valeurs propres et dégager ainsi clairement la signification de T_p , $\Delta E'$ et $A_{\mu\mu'}$ ($A_{\mu\mu'}$ est défini par III, A, 2, c).

Il est tout d'abord plus commode d'écrire ce système différentiel sous forme matricielle. Désignons par $\bar{\sigma}$ la matrice densité dans l'état fondamental. L'ensemble des quantités $A_{\mu\mu'}$ peut être considérée comme une matrice agissant dans cet état. Nous la désignons par A . Il vient ainsi :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \bar{\sigma} = - \frac{1}{2T_p} [A\bar{\sigma} + \bar{\sigma}A] - i\Delta E' [A\bar{\sigma} - \bar{\sigma}A]. \quad (\text{III, A, 4})$$

La matrice A est hermitique : $A_{\mu\mu'} = A_{\mu'\mu}^*$ comme on le voit sur la définition de ces quantités. Il s'ensuit (propriété générale des matrices hermitiques) que les valeurs propres de A sont réelles ; et que les vecteurs propres sont orthogonaux. Désignons par p_α et $|\alpha\rangle$ ces valeurs propres et ces vecteurs propres.

Les vecteurs $|\alpha\rangle$ forment une base orthonormée qui peut être utilisée pour décrire l'état fondamental au même titre que l'ensemble des vecteurs $|\mu\rangle$. En ce qui concerne l'équation (III, A, 4), la représentation $|\alpha\rangle$ est beaucoup plus commode, car la matrice A est diagonale dans cette représentation. Il vient ainsi :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\alpha\alpha'} = - \left[\frac{1}{2T_p} (p_\alpha + p_{\alpha'}) + i\Delta E' (p_\alpha - p_{\alpha'}) \right] \sigma_{\alpha\alpha'}. \quad (\text{III, A, 5})$$

Les valeurs propres du système différentiel linéaire (III, A, 1) s'obtiennent ainsi immédiatement. Écrite pour un élément diagonal $\sigma_{\alpha\alpha}$, (III, A, 5) devient :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\alpha\alpha} = -\frac{p_{\alpha}}{T_p} \sigma_{\alpha\alpha}. \quad (\text{III, A, 6})$$

Les conséquences physiques des équations (III, A, 5) et (III, A, 6) apparaissent alors très clairement.

a) Par suite du processus d'absorption, l'état $|\alpha\rangle$ acquiert une *durée* de vie bien définie et qui vaut $\frac{T_p}{p_{\alpha}}$.

b) Par suite de ce même processus, l'état $|\alpha\rangle$ est également *déplacé* d'une quantité $p_{\alpha}\Delta E'$.

Il ressort donc de cette étude que le processus d'absorption non seulement *élargit* mais *déplace* l'état fondamental. Ces deux effets distincts sont à associer respectivement à T_p et $\Delta E'$ (d'où l'origine de la notation choisie). La *force* du processus d'absorption est décrite par ces deux quantités. Lorsque le moment angulaire total I de l'état fondamental est différent de 0, il existe $(2I+1)$ « états » du moment angulaire, différents et orthogonaux, qui ont chacun une durée de vie et un déplacement énergétique bien définis : $\frac{T_p}{p_{\alpha}}$ et $p_{\alpha}\Delta E'$.

Ces états $|\alpha\rangle$ et les quantités p_{α} dépendent uniquement des quantités $A_{\mu\mu'}$ qui décrivent donc l'*aspect angulaire* du processus d'absorption.

Étant donnée leur importance, nous allons étudier maintenant de façon détaillée les quantités T_p , $\Delta E'$, $A_{\mu\mu'}$ dont l'expression est donnée par les formules (III, A, 2).

3^o Étude de T_p et $\Delta E'$: aspect énergétique du processus d'absorption. — a) *Transitions réelles et transitions virtuelles.* — Dans les expressions (III, A, 2), le système atomique intervient par une courbe d'absorption ou de dispersion centrée au point $\tilde{k}_0$, de largeur Γ (A_k varie très peu avec k ; de plus, nous négligeons pour le moment l'effet Doppler). Quant au champ de rayonnement, il intervient par la répartition spectrale $u(k)$, de largeur Δ . Nous supposons $u(k)$ symétrique autour de la valeur k_1 .

Pour avoir $\frac{1}{T_p}$ ou $\Delta E'$, il faut faire le produit de $u(k)$ par la courbe d'absorption ou de dispersion atomique et intégrer de 0 à $+\infty$ (fig. 4).

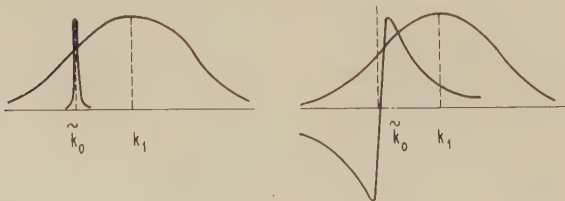


FIG. 4.

Pour $\frac{1}{T_p}$, le résultat de cette intégration est très simple, car Γ étant très petit devant Δ (condition (II, D, 2)), la courbe d'absorption atomique, de largeur Γ , se comporte comme une « fonction δ » vis-à-vis de $u(k)$. Il vient donc :

$$\frac{1}{2T_p} = \pi |A_{k_0}|^2 u(\tilde{k}_0). \quad (\text{III, A, 7})$$

On trouve ainsi que $\frac{1}{T_p}$ est proportionnel à l'intensité lumineuse excitatrice à la fréquence $\tilde{k}_0$.

Pour $\Delta E'$, le calcul de l'intégrale n'est pas aussi simple. On ne peut pas en effet, comme pour $\frac{1}{T_p}$, réduire le domaine d'intégration à un intervalle de largeur Γ entourant la valeur $\tilde{k}_0$. On peut par contre affirmer que la contribution de ce domaine d'intégration à la valeur de $\Delta E'$ est nulle. En effet, dans un domaine de largeur Γ , $u(k)$ ne varie pratiquement pas. Il peut donc être sorti de l'intégrale, qui vaut alors zéro par suite des symétries d'une courbe de dispersion.

Cette étude des expressions (III, A, 2) nous a donc permis d'établir le fait suivant : T_p ne dépend que des valeurs de $u(k)$ comprises à l'intérieur d'un domaine de largeur Γ entourant la valeur $\tilde{k}_0$. $\Delta E'$, par contre, ne dépend que des valeurs de $u(k)$ à l'extérieur de ce domaine.

Ceci nous amène alors tout naturellement à distinguer deux types de transitions différentes, qui se distinguent par l'énergie des photons qui les induisent : T_p est dû à l'un de ces types de transition, $\Delta E'$ à l'autre.

Lorsqu'il y a dans le faisceau lumineux excitateur un photon ayant une énergie égale, à Γ près, à l'énergie $\tilde{k}_0$ de la transition atomique, le photon peut être effectivement absorbé par l'atome. Une telle transition qui satisfait au principe de conservation de l'énergie est, pour cette raison, appelée *transition réelle*. L'effet d'une telle transition est de donner une durée de vie à l'état fondamental, puisque l'atome peut ainsi quitter effectivement cet état. Les transitions réelles élargissent donc l'état fondamental sans le déplacer.

Lorsque, par contre, l'énergie du photon k_1 diffère de $\tilde{k}_0$ d'une quantité supérieure à Γ , l'atome a une probabilité nulle d'avoir quitté l'état fondamental à la fin du processus d'excitation optique. Il ne peut se trouver dans l'état excité car l'énergie ne serait pas conservée dans une telle transition. La durée de vie de l'état fondamental n'est donc pas affectée par un tel processus.

Le couplage entre l'atome et le champ de rayonnement existe cependant. Si, pour des raisons liées à la conservation de l'énergie, ce couplage ne peut plus induire de transitions entre l'état fondamental et l'état excité, il n'en perturbe pas moins l'atome durant le processus d'excitation lui-même, et cette perturbation se traduit par un déplacement des niveaux d'énergie.

Ce résultat peut s'énoncer également d'une façon beaucoup plus imagée. Lorsque le défaut d'énergie $k_1 - \tilde{k}_0$ est supérieur à Γ , l'atome n'absorbe plus réellement le photon ; on dit qu'il peut l'absorber « virtuellement » et cela pendant un temps qui, d'après la quatrième relation d'incertitude est de l'ordre de $\frac{\hbar}{k_1 - k_0}$. L'effet de cette *transition virtuelle* est de mélanger l'état excité et l'état fondamental de l'atome et de modifier par suite l'énergie de ces états. Les transitions virtuelles déplacent donc l'état fondamental sans l'élargir.

Remarque. — Le photon est une particule relativiste. Il a une impulsion $\vec{k}(\hbar = c = 1)$. De même l'atome a une énergie cinétique correspondant aux degrés de liberté de translation. C'est donc le quadrivecteur impulsion-énergie, plutôt que l'énergie seulement, qui doit être conservé au cours d'une transition réelle. On retrouve ainsi sans difficulté l'effet Doppler $\vec{k}\vec{v}$ qui figure dans les expressions (III, A, 2).

b) **Lien avec l'absorption et la dispersion anormale de la vapeur.** — Étudions maintenant comment varient T_p et $\Delta E'$ en fonction de l'écart $k_1 - \tilde{k}_0$ entre le centre de la raie excitatrice k_1 et la fréquence de la transition atomique $\tilde{k}_0$.

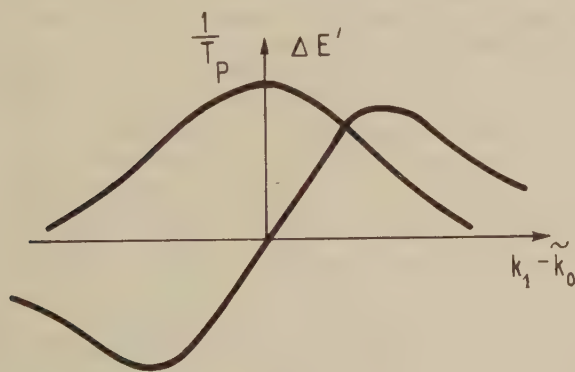


FIG. 5.

D'après (III, A, 7), $\frac{1}{T_p}$ varie exactement comme $u(k)$. L'interprétation que nous avons donnée de T_p rend ce résultat évident. Quant à $\Delta E'$, il est nul par raison de symétrie pour $k_1 = \tilde{k}_0$. Puis il croît avec $k_1 - \tilde{k}_0$. Un maximum du même ordre de grandeur que celui de $\frac{1}{T_p}$ est atteint lorsque $k_1 - \tilde{k}_0$ est de l'ordre de $\frac{\Delta}{2}$. $\Delta E'$ décroît ensuite, mais beaucoup plus lentement que $\frac{1}{T_p}$. En fait, on peut démontrer à partir de (III, A, 2) que

pour $k_1 - \tilde{k}_0 \gg \Delta$, $\Delta E'$ décroît comme $\frac{1}{k_1 - \tilde{k}_0}$ et que :

$$\frac{1/T_p}{\Delta E'} \sim \frac{\Gamma}{k_1 - \tilde{k}_0} \ll 1.$$

La variation de $\frac{1}{T_p}$ et de $\Delta E'$ avec $k_1 - \tilde{k}_0$ rappelle de façon frappante celle de la partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction de la vapeur, c'est-à-dire l'absorption et la dispersion anormale. Cette analogie est plus que formelle et a une signification physique très profonde. Lorsqu'une transition *réelle* se produit, le photon est absorbé et disparaît du faisceau incident. C'est le phénomène d'absorption. Lorsqu'une transition *virtuelle* se produit, le photon est absorbé virtuellement pendant un temps très court ; puis il est replacé dans sa direction de propagation initiale. Néanmoins, pendant le temps que dure la transition virtuelle, le photon ne se propage pas puisqu'il est « happé » par l'atome. On conçoit donc que la vitesse de propagation des photons au sein de la vapeur soit affectée par les transitions virtuelles. C'est le phénomène de dispersion anormale.

Cette analogie peut être également soulignée de la façon suivante. L'interaction entre l'atome et le photon incident a des conséquences à la fois sur l'atome et sur le photon. Jusqu'à présent, seuls les effets de cette interaction sur le photon ont été étudiés : les phénomènes d'absorption et de dispersion anormale sont connus depuis fort longtemps. Le présent travail permet d'affirmer que les effets correspondants existent pour l'atome : les niveaux d'énergie dans l'état fondamental sont élargis et déplacés par suite de l'interaction avec le faisceau lumineux.

c) **Variation de $\frac{1}{T_p}$ et $\Delta E'$ avec l'intensité lumineuse.** —

Il est facile de voir sur les expressions (III, A, 2) que $\frac{1}{T_p}$ et $\Delta E'$ sont proportionnels à l'intensité lumineuse. $u(k)dk$ représente en effet par définition le nombre de photons ayant leur énergie comprise dans l'intervalle k , $k + dk$. Faire varier l'intensité lumineuse revient à multiplier $u(k)$ et par suite $\frac{1}{T_p}$ et $\Delta E'$, par le facteur correspondant. Ceci se comprend d'ailleurs aisément. Plus grand est le nombre de photons dans le faisceau lumineux, plus grande est la probabilité pour qu'une transition réelle ou virtuelle se produise.

Nous devons donc nous attendre à ce que les effets d'élargissement et de déplacement des niveaux d'énergie causés par la lumière varient linéairement avec l'intensité lumineuse.

Remarque. — Avant de terminer ce chapitre, signalons que les effets associés à T_p et à $\Delta E'$, durée de vie et déplacement énergétique, sont très analogues aux

effets radiatifs associés au processus d'émission spontanée : largeur naturelle Γ et self-énergie ΔE . Nous reviendrons en détail sur cette analogie lors de l'étude du processus d'émission spontanée.

4^o Étude des $A_{\mu\mu'}$. Aspect angulaire du processus d'absorption. — *a) Caractère isotrope ou anisotrope du processus d'absorption.* — Les $A_{\mu\mu'}$ s'expriment à partir des quantités sans dimensions $\langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m \rangle$ qui décrivent la dépendance angulaire des éléments de matrice du hamiltonien d'interaction $\mathcal{H}_I$. Ils dépendent essentiellement de la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$. L'étude faite plus haut nous a montré que les *vecteurs propres* $|\alpha\rangle$ et les *valeurs propres* p_α de la matrice $A_{\mu\mu'}$ jouaient un rôle important en ce qui concerne les propriétés du processus d'absorption.

— L'atome et le photon possédant chacun un moment angulaire, l'absorption du photon par l'atome doit être décrite comme un processus d'interaction élémentaire entre deux particules douées de spin. Comme nous l'avons vu, l'état angulaire du photon est décrit par $\vec{e}_{\lambda_0}$. Lorsqu'il interagit avec un atome qui se trouve dans l'état angulaire $|\alpha\rangle$, nous avons vu plus haut que la probabilité d'une transition réelle était $\frac{p_\alpha}{T_p}$, celle d'une transition virtuelle $p_\alpha \Delta E'$. Deux cas sont alors à distinguer.

$\alpha)$ Toutes les valeurs propres p_α de A sont identiques (la matrice $A_{\mu\mu'}$ est un multiple de la matrice unité). Dans ce cas, la probabilité d'un processus d'interaction élémentaire entre l'atome et le photon est la même quel que soit l'état angulaire de l'atome. Nous dirons alors que le processus d'absorption est *isotrope*.

$\beta)$ Les valeurs propres p_α de A ne sont pas toutes identiques. Si, par exemple, $p_\alpha \neq p_{\alpha'}$, la probabilité d'un processus d'interaction élémentaire n'est pas la même suivant que l'atome est dans l'état $|\alpha\rangle$ ou dans l'état $|\alpha'\rangle$. Elle dépend donc des états angulaires respectifs de l'atome et du photon. Nous dirons alors que le processus d'absorption est *anisotrope*.

Nous verrons plus loin qu'il est possible de réaliser des conditions expérimentales correspondant à ces deux cas.

b) Symétries du processus d'absorption. — Dans le cas isotrope, la symétrie du processus d'absorption est évidemment la symétrie sphérique.

— Dans le cas anisotrope, elle est beaucoup moins simple. Les états angulaires privilégiés par le processus d'absorption sont les états propres $|\alpha\rangle$ de la matrice $A_{\mu\mu'}$. Cette matrice étant en général non diagonale, les états $|\alpha\rangle$ ne coïncident pas avec les états $|\mu\rangle$ qui sont les états propres de la composante I_z du moment angulaire total de l'atome suivant l'axe Oz qui porte le champ magnétique statique H_0 .

Le fait que les états $|\alpha\rangle$ soient en général différents des états $|\mu\rangle$ ne doit pas surprendre. Comme nous supposons $\Delta \gg \omega_e, \omega_f$, ceci entraîne, d'après la signification physique que nous avons donnée à $\frac{1}{\Delta}$ dans le chapitre précédent, que le moment angulaire atomique n'a pas le temps de précesser autour du champ magnétique H_0 pendant la durée effective $\frac{1}{\Delta}$ d'un processus élémentaire d'absorption. Les propriétés instantanées et intrinsèques d'un tel processus n'ont donc aucune raison de dépendre de la grandeur ou de la direction du champ magnétique, ce que l'on constate effectivement sur les expressions (III, A, 2) de $\frac{1}{T_p}, \Delta E', A_{\mu\mu'}$. La symétrie du processus d'absorption est donc déterminée uniquement par la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau lumineux.

— Il est possible de donner une image encore plus physique des états $|\alpha\rangle$. Supposons un instant que le processus d'absorption soit le seul à agir sur l'atome ; c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'émission spontanée et que le champ magnétique est rigoureusement nul. En l'absence du faisceau lumineux, l'état fondamental a une dégénérescence d'ordre $2I + 1$. Lorsqu'on le soumet à l'action d'un faisceau lumineux polarisé, cette dégénérescence est levée. Il apparaît des sous-niveaux d'énergie qui ne sont autres que les états $|\alpha\rangle$. Les états $|\alpha\rangle$ sont donc au processus d'absorption ce que les états $|\mu\rangle$ sont à l'interaction Zeeman.

— Les états $|\alpha\rangle$ étant ainsi beaucoup mieux adaptés que les états $|\mu\rangle$ pour l'étude du processus d'absorption, on peut se demander s'il ne vaudrait pas mieux écrire toutes les équations (III, A, 1) dans la représentation $|\alpha\rangle$. En fait, pour décrire l'évolution globale, nous devons tenir compte plus loin des deux autres processus, l'émission spontanée $\left(\frac{d^{(2)}}{dt}\right)$ et l'interaction Zeeman $\left(\frac{d^{(3)}}{dt}\right)$. Nous verrons que l'émission spontanée est un processus isotrope ; son étude peut donc être faite dans n'importe quel système de base. Par contre l'interaction Zeeman, dont la force est caractérisée par ω_f , est plus commode à étudier dans la représentation $|\mu\rangle$. Toutes les expériences envisagées dans ce travail correspondent à une situation où $\omega_f \gg \frac{1}{T_p}$ (la fréquence des raies de résonance magnétique dans l'état fondamental, ω_f , est grande devant la largeur d'origine optique $\frac{1}{T_p}$ de ces raies). L'interaction Zeeman l'emporte donc sur la perturbation associée au processus d'absorption. C'est la raison pour laquelle nous avons adopté dans tout ce travail la représentation $|\mu\rangle$. Si l'on voulait par contre faire une étude du pompage optique en champ nul ou très faible ($\omega_f \ll \frac{1}{T_p}$), il est évident qu'il

faudrait alors se placer plutôt dans la représentation $|\alpha\rangle$.

— Signalons enfin qu'il existe un cas où les états $|\alpha\rangle$ sont confondus avec les états $|\mu\rangle$. C'est celui où la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est l'une des trois polarisations σ^+ , σ^- , π . On voit en effet sur l'expression (III, A, 2, c) que $A_{\mu\mu'}$ n'est différent de zéro pour $\mu \neq \mu'$ que si l'état de polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ permet l'existence de deux transitions partant de deux sous-niveaux différents μ et μ' et aboutissant au même sous-niveau m , ce qui est impossible pour les trois polarisations σ^+ , σ^- , π qui obéissent à des règles de sélection bien définies $m - \mu = +1, -1, 0$. La matrice A est donc diagonale dans la représentation μ . Ces faits se comprennent bien physiquement : les trois polarisations σ^+ , σ^- , π correspondent à des photons pour lesquels la composante du moment angulaire suivant l'axe Oz a une valeur bien définie. Aucune direction transversale n'est alors privilégiée. Il est alors tout à fait naturel que la direction Oz joue un rôle important dans la symétrie du processus d'absorption.

c) **Cas des isotopes impairs du mercure.** — Rappelons tout d'abord que l'équation (III, A, 1, a) n'est écrite que pour une seule composante hyperfine de la raie de résonance. Les états m qui figurent dans (III, A, 2, c) appartiennent uniquement au sous-niveau hyperfin F de l'état excité (voir I, A, 1). Nous supposons donc implicitement que la fréquence moyenne k_1 de la raie excitatrice est suffisamment proche de k_0 ; et que la largeur Δ de cette raie est suffisamment petite devant la structure hyperfine S_H de l'état excité pour que les transitions réelles et virtuelles induites par le faisceau lumineux vers les autres sous-niveaux hyperfins F' de l'état excité soient négligeables.

On peut montrer cependant que l'équation (III, A, 1, a) se généralise facilement au cas où Δ n'est pas très petit devant S_H . Il suffit alors d'écrire séparément l'équation (III, A, 1, a) pour chacune des composantes hyperfines de la raie de résonance optique (les valeurs de T_p et $\Delta E'$ sont alors en général différentes de l'une à l'autre) ; puis d'ajouter ces différentes équations.

Deux cas sont alors à distinguer :

$\alpha)$ $\Delta \gg S_H$ (la largeur de la raie excitatrice est grande devant la structure hyperfine S_H . Excitation du type « broad-line »). — Dans ce cas, les valeurs de T_p et $\Delta E'$ sont les mêmes pour toutes les composantes hyperfines. L'équation (III, A, 1, a) demeure valable à condition de considérer la sommation qui figure dans (III, A, 2, c) comme étendue à tous les sous-niveaux hyperfins $F, F' \dots$ de l'état excité et non à F seulement.

Les quantités $\langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m \rangle$ s'expriment très simplement à partir des quantités correspondantes pour l'isotope pair $\langle \mu = 0 | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m_J = m - \mu \rangle_{I=0}$ et des coefficients de Clebsch Gordan $C_{II}(F, m; m - \mu, \mu)$ qui décrivent le couplage entre le moment angulaire

nucléaire I et le moment angulaire électronique $J = 1$ de l'état excité (2) (3) :

$$\langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m \rangle = \langle \mu = 0 | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m_J = m - \mu \rangle_{I=0} C_{II}(F, m; m - \mu, \mu). \quad (\text{III, A, 8})$$

Lorsque la sommation de (III, A, 2, c) est étendue à l'ensemble des sous-niveaux F, m de l'état excité, on peut montrer alors facilement à partir des règles de somme sur les coefficients de Clebsch-Gordan que la matrice $A_{\mu\mu'}$ est égale à la matrice unité.

Dans le cas d'une excitation broad-line, le processus d'absorption est donc isotrope.

$\beta)$ $\Delta \sim S_H$ ou $\Delta \ll S_H$. — On ne peut plus utiliser les règles de somme et il n'y a alors aucune raison pour que la matrice $A_{\mu\mu'}$ soit un multiple de la matrice unité, comme on peut le vérifier sur quelques exemples particuliers.

Dans ce cas, le processus d'absorption est donc en général anisotrope.

Remarque. — Le fait que les valeurs relatives de Δ et S_H jouent un rôle important pour déterminer si le processus d'absorption est isotrope ou anisotrope peut se comprendre de façon très simple :

L'état fondamental de l'atome a un moment angulaire électronique $J = 0$. Son moment angulaire provient uniquement du spin nucléaire I . La transition étant dipolaire électrique, le couplage avec le champ de rayonnement fait intervenir uniquement les électrons et n'affecte pas le noyau. Il semblerait donc *a priori* que les états angulaires respectifs du noyau et du photon n'interviennent pas dans la probabilité d'une absorption et que le processus d'absorption soit toujours isotrope. Un tel raisonnement est cependant incorrect car il ne fait intervenir que l'état initial du processus et néglige l'état final. Or, le noyau intervient dans l'état final car le moment magnétique qu'il porte interagit avec celui de l'atmosphère électronique de l'état excité. C'est cette interaction qui est responsable de la décomposition du niveau excité en plusieurs sous-niveaux hyperfins $F, F' \dots$. On peut dire encore que le moment magnétique électronique précède dans le champ magnétique créé par le noyau avec une période de l'ordre de $\frac{1}{S_H}$.

Lorsque $\Delta \gg S_H$, la durée effective $\frac{1}{\Delta}$ du processus d'absorption est trop courte devant $\frac{1}{S_H}$ pour que l'électron et le noyau aient le temps de se coupler magnétiquement pendant la durée du processus d'absorption. Le noyau ne joue alors aucun rôle ni dans l'état initial, ni dans l'état final. La probabilité du processus ne dépend pas de son état angulaire. Le processus d'absorption est par suite isotrope.

Envisageons par contre le cas où $\Delta \leq S_H$. Lors du pro-

cessus d'absorption, l'atmosphère électronique acquiert un moment angulaire qui est celui du photon absorbé. Le processus d'absorption dure suffisamment longtemps pour que le moment angulaire électronique ainsi créé ait le temps de se coupler magnétiquement au moment angulaire du noyau. L'état angulaire de ce dernier intervient alors au cours du processus d'absorption et on conçoit qu'il puisse jouer un rôle pour déterminer la probabilité de ce processus.

Dans le cas du mercure, il est facile d'exciter une seule composante hyperfine de la raie de résonance. Dans la suite de ce travail, nous nous supposons placés dans ce cas.

5° Détection optique de l'état angulaire du système atomique dans l'état fondamental. — L'étude de l'aspect angulaire du processus d'absorption nous a permis de dégager la propriété importante suivante :

La probabilité pour qu'un photon, de polarisation donnée $\vec{e}_{\lambda_0}$, soit absorbé dépend, lorsque l'excitation n'est pas broad-line, de l'état angulaire dans lequel se trouve le système atomique dans l'état fondamental.

L'équation (III, A, 1, c) s'interprète ainsi immédiatement : elle exprime que l'absorption des photons $\vec{e}_{\lambda_0}$ à l'instant t renseigne sur l'état angulaire de l'ensemble des atomes au même instant : $\sigma_{\mu\mu'}(t)$. Il s'ensuit que toute variation dans le temps de cet état angulaire peut se détecter par une variation correspondante de la lumière absorbée L_A .

Cette propriété très importante est à la base de toute une catégorie de méthodes de détection optique de la résonance magnétique dans l'état fondamental.

Lorsque la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est σ^+ , σ^- ou π , la matrice A est diagonale et l'absorption est sensible uniquement à l'état angulaire longitudinal du système atomique :

$$L_A = \frac{1}{T_p} \sum_{\mu} A_{\mu\mu} \sigma_{\mu\mu}. \quad (\text{III, A, 9})$$

La variation de la lumière absorbée au cours du temps permet d'observer la façon dont les *populations* tendent vers leurs valeurs d'équilibre lorsqu'on modifie brusquement l'une des conditions dans lesquelles se trouvent les atomes (application à l'étude des transitoires de pompage optique, de radiofréquence...). En présence d'un champ de radiofréquence $H_1 e^{i\omega t}$, la répartition des populations d'équilibre dépend de l'écart $\omega - \omega_f$. L_A varie donc avec $\omega - \omega_f$ et permet le tracé des courbes de résonance magnétique.

Lorsque la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est « cohérente », l'absorption L_A est également sensible à l'état angulaire transversal (« cohérence hertzienne » $\sigma_{\mu\mu'}$) du système atomique. Or, le moment angulaire transversal précesse autour du champ magnétique : $\sigma_{\mu\mu'}$ varie comme $e^{-i(\mu - \mu')\omega_f t}$ (En présence d'un champ de radiofréquence $H_1 e^{i\omega t}$, la précession qui est *forcée* se fait à la fréquence ω ;

$\sigma_{\mu\mu'}$ varie alors comme $e^{-i(\mu - \mu')\omega t}$). Il existe donc, dans la lumière absorbée des composantes modulées aux fréquences $r\omega_f$ (ou $r\omega$) dont l'expression est donnée par :

$$L_A^{(r)} = \frac{1}{T_p} \sum_{\mu - \mu' = \pm r} A_{\mu\mu'} \sigma_{\mu\mu'}. \quad (\text{III, A, 10})$$

(En fait, r ne peut dépasser 2 : ceci provient du caractère dipolaire électrique de la transition : $\langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | m \rangle$ est nul dès que $|m - \mu| > 1$; ce qui entraîne que :

$$A_{\mu\mu'} = 0 \quad \text{si} \quad |\mu - \mu'| > 2).$$

Au moyen d'un amplificateur sélectif, il est possible d'isoler $L_A^{(1)}$ ou $L_A^{(2)}$ et d'étudier ainsi l'évolution du moment angulaire transversal en régime transitoire ou statique.

Le cas où la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est « cohérente » est celui des *expériences de faisceau croisé* dont le principe fut suggéré par Dehmelt et appliqué au cas des alcalins par Bell et Bloom (6) (21).

Le présent travail permet d'établir l'expression exacte (III, A, 10) des modulations aux fréquences ω_f et $2\omega_f$ à partir des éléments de la matrice densité. Il permet surtout d'évaluer quantitativement la perturbation apportée par le faisceau croisé à la « cohérence hertzienne » $\sigma_{\mu\mu'}$ qu'il permet de détecter. Nous verrons, en effet, lors de l'étude de l'évolution globale de l'état fondamental, que la précession de $\sigma_{\mu\mu'}$ est amortie et que la fréquence de cette précession est légèrement déplacée par suite de l'interaction avec le faisceau lumineux. Il faut tenir compte de l'effet de cette perturbation sur l'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}(t)$, si l'on veut interpréter quantitativement le signal de modulation (III, A, 10).

Nous verrons plus loin que, dans le cas des isotopes impairs du mercure ^{199}Hg , ^{201}Hg , l'expérience permet de vérifier quantitativement tous les résultats théoriques concernant la modulation de l'absorption.

Remarque. — Dans ce paragraphe, nous avons étudié uniquement les conséquences de la dépendance angulaire des transitions réelles sur le champ de rayonnement : l'absorption des photons $\vec{e}_{\lambda_0}$ dépend de $\sigma_{\mu\mu'}$.

On pourrait également étudier les conséquences de la dépendance angulaire des transitions virtuelles. La vitesse de propagation des photons $\vec{e}_{\lambda_0}$ dans un milieu matériel dépend de l'état d'orientation angulaire de ce milieu (indice de réfraction d'un milieu anisotrope). On pourrait imaginer une détection optique de l'état angulaire du système atomique utilisant la dispersion anormale (l'effet Faraday par exemple).

Bien qu'il soit très intéressant, nous ne nous attacherons pas plus longtemps à ce problème, car les grandeurs mesurées dans les expériences que nous étudions ici sont essentiellement des quantités de lumière absorbées ou réémises.

6° Effets du processus d'absorption sur l'état excité de l'atome. — Cet effet est décrit par l'équation (III, A, 1, b). Nous voyons que l'état excité est créé à partir de l'état fondamental grâce à l'excitation optique. En fait, $\Delta E'$ n'intervient pas dans (III, A, 1, b). Ce sont donc seulement les transitions réelles qui interviennent pour peupler effectivement l'état excité.

L'équation (III, A, 1, b) exprime tout simplement que le moment angulaire de l'état excité résulte de la composition du moment angulaire de l'état fondamental et de celui du photon absorbé.

En particulier, on voit qu'on peut créer une orientation atomique globale dans l'état excité même si l'état fondamental qui sert à le préparer n'en possède pas ($\sigma_{\mu\mu'} = \delta_{\mu\mu'}$). L'orientation qui est obtenue provient alors uniquement du photon absorbé. C'est ainsi par exemple que le moment angulaire longitudinal cédé par le photon permet d'obtenir des différences de populations entre les sous-niveaux Zeeman de l'état excité et d'effectuer par suite la résonance magnétique (cette propriété est utilisée dans l'expérience de double résonance). On voit d'autre part qu'il est possible d'introduire de la « cohérence hertzienne » $\sigma_{mm'}$ dans l'état excité en utilisant des photons qui ont une polarisation « cohérente » (qui possèdent une cohérence hertzienne) : ces photons cèdent à l'atome leur moment angulaire transversal.

B. — Étude du processus d'émission spontanée

1° Résultats théoriques. — Les effets du processus d'émission spontanée sur l'état excité et sur l'état fondamental de l'atome sont donnés par les équations (II, 18) et (III, 7) de $J - P1$ (équations qui sont écrites pour une composante hyperfine de la transition $6^1S_0 - 6^3P_1$ des isotopes impairs du mercure) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{mm'} = -\Gamma \sigma_{mm'} \\ \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'} = \Gamma \sum_{\substack{m, m' \\ m' = \mu - \mu'}} C_{11}(F, m; m - \mu, \mu) \\ \quad C_{11}(F, m'; m' - \mu', \mu') \sigma_{mm'} \\ L_F(\vec{e}_\lambda) = \frac{3\Gamma}{8\pi} \sum_{mm'} A_{mm'} \sigma_{m'm} \end{array} \right\} \quad \begin{array}{l} \text{(III, B, 1, a)} \\ \text{(III, B, 1, b)} \\ \text{(III, B, 1, c)} \end{array}$$

La quantité de lumière de fluorescence émise par unité de temps, dans une direction donnée et avec un état de polarisation donné $L_F(\vec{e}_\lambda)$, se calcule aisément à partir de l'équation (III, 4) de $J - P1$. $A_{mm'}$ est donné par :

$$A_{mm'} = \sum_{\mu} \langle m | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu | \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D} | m' \rangle. \quad \text{(III, B, 2)}$$

Les quantités $C_{11}(F, m; m - \mu, \mu)$ ont été définies

plus haut. Ce sont les coefficients de Clebsch-Gordan relatifs au couplage entre le moment angulaire électronique $J = 1$ de l'état excité et le spin nucléaire I .

— Nous allons essayer de comprendre les aspects généraux du processus d'émission spontanée en utilisant les résultats établis dans le chapitre précédent à propos de l'absorption. Il suffit pour cela d'utiliser les deux propriétés importantes signalées dans le § I, C, 3 :

a) l'émission spontanée peut être considérée comme une émission induite par les fluctuations du vide ;

b) les processus d'absorption et d'émission induite sont entièrement symétriques.

Nous allons grouper les fluctuations du vide en un certain nombre de catégories. Nous désignons par « fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ », celles qui correspondent à tous les modes possibles du champ de rayonnement pour lesquels la direction de $\vec{k}_i$ se trouve comprise dans un petit angle solide $d\Omega$ autour d'une direction donnée et qui ont tous la même polarisation $\vec{e}_\lambda$, perpendiculaire à cette direction.



FIG. 6.

On peut assimiler en quelque sorte les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ à un « faisceau lumineux » de direction et polarisation données qui provoque l'émission induite des atomes qui se trouvent dans l'état excité. Les propriétés de cette émission induite se comprennent très facilement à partir des résultats du chapitre précédent. Il faut ensuite sommer sur toutes les directions et polarisations possibles pour avoir les propriétés globales de l'émission spontanée. L'allure générale des équations (III, B, 1) se comprend aisément à partir de cette idée.

L'équation (III, B, 1, c) présente beaucoup d'analogies avec l'équation (III, A, 1, c). Ceci est dû au fait qu'elle ne fait intervenir que les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$. La lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ émise par unité de temps dans l'angle solide $d\Omega$ et avec la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est en effet proportionnelle à la probabilité d'émission induite par le « faisceau $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ ». Il est par suite normal que les expressions (III, A, 1, c) et (III, B, 1, c) soient très voisines.

Par contre, les équations (III, B, 1, a) et (III, B, 1, b) sont beaucoup plus simples que les équations (III, A, 1, a) et (III, A, 1, b). Ceci provient du fait que pour avoir

l'effet global de l'émission spontanée sur l'état excité et sur l'état fondamental de l'atome, il faut *sommer* sur tous les « faisceaux $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ ». L'interaction *globale* prend alors un caractère isotrope, ce qui simplifie énormément les équations.

En d'autres termes, tant qu'on s'intéresse uniquement aux fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$, l'émission spontanée a un caractère anisotrope. Dès qu'on somme sur toutes les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$, elle revêt un caractère isotrope.

2° Aspect énergétique du processus d'émission spontanée. — L'émission induite par les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ correspond à une transition où l'atome passe de l'état excité à l'état fondamental et où l'un des modes du champ de rayonnement associés aux fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ passe de l'état $n = 0$ à l'état $n = 1$. Là encore, nous pouvons distinguer des transitions réelles ou virtuelles suivant qu'elles conservent ou non l'énergie.

Les transitions réelles font intervenir les modes pour lesquels l'énergie caractéristique k_i est égale à $\tilde{k}_0 + \vec{k}_0 \cdot \vec{\nu}$ (à Γ près). L'état excité n'est donc pas un état stable puisque des transitions *réelles* peuvent se produire à partir de cet état. Il a une *durée de vie radiative finie*. L'importance de ces transitions réelles fait intervenir la constante de couplage $\frac{e^2}{\hbar c}$, la force $|A_{k_0}|^2$ de la transition atomique ; elle fait intervenir également le nombre de modes distincts susceptibles de provoquer ces transitions. Ce nombre est proportionnel à la densité de modes au voisinage de $\tilde{k}_0$, c'est-à-dire $\tilde{k}_0^2 d\Omega$. La fonction k^2 joue ici le rôle de la répartition spectrale $u(k)$ du chapitre précédent. On comprend ainsi pourquoi l'importance *a priori* de l'émission spontanée croît avec l'énergie de la transition considérée.

Les modes dont l'énergie n'est pas égale (à Γ près) à $\tilde{k}_0 + \vec{k}_0 \cdot \vec{\nu}$ ne peuvent induire de transitions réelles. Ils sont néanmoins couplés à l'atome. Leur effet est de déplacer les niveaux d'énergie atomiques et peut être décrit en termes de *transitions virtuelles* : émissions et réabsorptions virtuelles d'un photon qui mélangent chaque état d'énergie de l'atome à tous les autres. Le déplacement d'énergie correspondant est une *self-énergie* car il existe en l'absence de tout photon. Il est à l'origine du *Lamb-shift* (28).

Remarquons que l'état fondamental a, lui aussi, une self-énergie due aux fluctuations de vide. Par contre, il n'a pas de largeur naturelle car des transitions réelles d'émission spontanée ne peuvent se produire à partir de l'état fondamental.

3° Aspect angulaire du processus d'émission spontanée. — Les photons émis sous l'effet des fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ ont tous le même moment angulaire déterminé à partir de $\vec{e}_\lambda$ (cf. I, B, 4). Par suite de la conser-

vation du moment angulaire lors de la transition, ce moment angulaire est aussi celui de l'atmosphère électronique de l'état excité (pour l'atome de mercure, J est nul dans l'état fondamental). Comme nous nous intéressons à un sous-niveau hyperfin particulier F de l'état excité, le moment angulaire électronique est, d'après le théorème de Wigner-Eckart, proportionnel au moment angulaire total. La probabilité pour que le moment angulaire électronique ait une certaine direction dépend donc de l'état angulaire $\sigma_{mm'}$ de l'atome dans l'état excité ; il s'ensuit que la probabilité d'émission d'un photon $\vec{e}_\lambda$ dépend de $\sigma_{mm'}$. L'interaction entre l'atome excité et les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ présente donc un *caractère anisotrope*. C'est ce qu'exprime la relation (III, B, 1, c) qui présente beaucoup d'analogies avec la relation (III, A, 1, c) étudiée lors du processus d'absorption, comme nous l'avons déjà souligné plus haut.

De la même façon que dans le § A, on verrait également que la polarisation $\vec{e}_\lambda$ doit être « cohérente » (ni σ^+ , ni σ^- , ni π), si l'on veut que la probabilité d'émission d'un photon $\vec{e}_\lambda$ soit sensible à l'état angulaire transversal $\sigma_{mm'}$ de l'atome dans l'état excité ($A_{mm'} \neq 0$ pour $m \neq m'$).

4° Détection optique de l'état angulaire du système atomique dans l'état excité. — Les propriétés découlant de l'expression (III, B, 1, c) et que nous venons d'analyser ont une conséquence importante :

L'observation de la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ émise dans une direction donnée et avec un état de polarisation $\vec{e}_\lambda$ donné permet de détecter optiquement toute évolution de l'état angulaire du système atomique dans l'état *excité*. L'évolution de l'état angulaire transversal est détectée lorsque la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est « cohérente ». Cette propriété est à la base de toute une série de méthodes de détection optique de la résonance magnétique dans l'état excité. On peut répéter ici tout ce qui a été dit dans le § III, A, 5 en remplaçant μ, μ' par m, m' et $\vec{e}_{\lambda_0}$ par $\vec{e}_\lambda$.

En particulier la formule (III, B, 1, c) prévoit l'existence d'une modulation de la lumière de fluorescence aux fréquences ω et 2ω lorsqu'on effectue la résonance magnétique dans l'état *excité* et lorsque la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est cohérente (ω est la pulsation du champ de radio-fréquence). Ces phénomènes ont été mis en évidence par Series (22) et sont désignés sous le nom de *battements lumineux* (light-beats).

Le terme de battements lumineux fait songer à un battement entre deux ondes lumineuses dont les fréquences différeraient de ω ou 2ω ; ce qui impliquerait l'existence d'une phase bien définie pour chacune de ces ondes. En fait, le modèle que nous avons choisi ici pour décrire le faisceau lumineux permet d'ignorer à tout instant la phase de l'onde lumineuse. La modu-

lation de la lumière de fluorescence est donc plutôt due aux deux faits suivants :

a) La probabilité d'émission d'un photon $\vec{e}_\lambda$ par un atome donné dépend de l'état angulaire de cet atome ; elle est donc modulée par la précession du moment angulaire transversal.

b) Lorsque $\sigma_{mm'} \neq 0$, les *précessions de Larmor des différents atomes sont en phase*, et par suite également les modulations des probabilités d'émission ; ce qui entraîne une modulation globale de la lumière $L_F(\vec{e}_\lambda)$ émise par la vapeur.

5° Effets de l'émission spontanée sur l'état excité de l'atome. — Les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$ ne sont pas les seules à agir sur l'état excité de l'atome. Pour avoir l'effet *global* de l'émission spontanée sur cet état excité, il faut sommer sur tous les angles solides $d\Omega$ et toutes les polarisations possibles $\vec{e}_\lambda$. L'interaction *globale* prend alors un caractère *isotrope*. *A priori*, aucune direction de l'espace n'est privilégiée.

Il s'ensuit que les atomes dans l'état excité ont la même self-énergie ΔE et la même durée de vie radiative $\tau = 1/\Gamma$, quel que soit l'état angulaire dans lequel ils se trouvent. C'est ce qu'exprime l'équation (III, B, 1, a) (ΔE n'apparaît pas dans cette équation car les sous-niveaux m et m' ont le même déplacement ΔE).

6° Effets de l'émission spontanée sur l'état fondamental de l'atome. — Les atomes qui retournent à l'état fondamental par émission spontanée introduisent dans cet état une image de ce qui se passe dans l'état excité. C'est ce qu'exprime l'équation (III, B, 1, b).

La restriction $m - m' = \mu - \mu'$ sur la sommation qui figure dans cette expression a la signification suivante : un photon d'émission spontanée a une polarisation $\vec{e}_\lambda$ qui, dans le cas général, est une superposition linéaire des trois vecteurs orthogonaux $\vec{u}_+, \vec{u}_0, \vec{u}_-$ (cf. § I, B, 4). Lorsqu'on somme sur toutes les fluctuations $d\Omega, \vec{e}_\lambda$, toutes les superpositions ont une probabilité égale *a priori*. Il en résulte que tous les effets liés au fait que $\vec{e}_\lambda$ est une superposition linéaire se moyennent globalement à zéro. On peut donc, pour calculer l'effet global de l'émission spontanée, sommer indépendamment sur les trois états de polarisation σ^+, σ^- et π qui correspondent à $\vec{u}_+, \vec{u}_-, \vec{u}_0$. La condition :

$$m - \mu = m' - \mu'$$

en résulte.

Une conséquence de cette condition est qu'il n'apparaît de cohérence hertzienne $\sigma_{\mu\mu'}$ dans l'état fondamental par émission spontanée que s'il en existe auparavant dans l'état excité. Ceci se comprend bien physiquement. A cause de son caractère isotrope *a priori*, l'émission spontanée ne peut changer globalement

la direction angulaire privilégiée du système atomique lorsqu'elle le fait passer de l'état excité à l'état fondamental. Insistons sur le fait que cette propriété n'est vraie que de façon globale. Lors d'un processus d'émission spontanée *individuel*, le moment angulaire emporté par le photon a une direction déterminée, ce qui entraîne en général un changement de direction pour le moment angulaire atomique (expériences de corrélation angulaire). Mais ce changement de direction varie aléatoirement d'un processus à l'autre, ce qui entraîne la propriété globale précédente.

7° Différences entre les processus d'absorption et d'émission spontanée. — Ces différences sont de deux sortes :

a) **Différences d'ordre de grandeur.** — Avec les intensités lumineuses utilisées, l'absorption (ou l'émission induite) du faisceau lumineux qui excite la résonance optique des atomes produisent sur les niveaux d'énergie atomiques des effets $\left(\frac{1}{\Gamma_p}, \Delta E'\right)$ beaucoup plus petits que ceux de l'émission spontanée ($\Gamma = 1/\tau, \Delta E$). Dans les expériences réalisées sur le mercure et qui sont décrites plus loin, les valeurs obtenues pour $\frac{1}{\Gamma_p}$ et $\Delta E'$ avec les sources lumineuses les plus intenses sont de l'ordre du hertz alors que Γ et ΔE sont de l'ordre du mégahertz.

Les effets du faisceau lumineux sur les niveaux d'énergie ne peuvent donc être observés que sur l'état fondamental qui, étant stable dans le vide de photons, n'a pas de largeur naturelle en l'absence de toute autre perturbation.

b) **Différences d'aspect angulaire.** — L'isotropie des fluctuations du vide fait que tous les sous-niveaux de l'état excité ont la même self-énergie ΔE et la même largeur naturelle Γ . De même, tous les sous-niveaux de l'état fondamental ont la même self-énergie. L'émission spontanée ne différencie donc pas entre eux les différents sous-niveaux Zeeman.

Par contre, dans le cas de l'absorption d'un faisceau polarisé dirigé, il est possible d'élargir et de déplacer différemment les sous-niveaux de l'état fondamental. Cette propriété est très importante pour l'observation expérimentale de $\Delta E'$: $\Delta E'$ étant noyé dans la largeur naturelle Γ du niveau excité, on ne peut en effet espérer l'observer sur une transition optique. Par contre, si le faisceau lumineux déplace de façon différente deux sous-niveaux de l'état fondamental, on peut détecter $\Delta E'$ par un déplacement de la raie de résonance magnétique.

Enfin, on ne peut faire varier les effets liés à l'émission spontanée et qui existent *a priori*. Par contre, on dispose de plusieurs paramètres pour agir sur Γ_p et $\Delta E'$ (intensité lumineuse, répartition spectrale, polarisation).

C. — Évolution globale de l'état excité

1° Résultats théoriques. — L'évolution globale dans le temps du système atomique est décrite par le système d'équations différentielles couplées (II, B, 1). Nous commencerons par étudier l'équation (II, B, 1, b). Ce choix est dicté par les deux raisons suivantes :

a) Le terme $\frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{mm'}$ est particulièrement simple (ceci résulte de l'isotropie de l'émission spontanée).

b) Le temps de vie τ de l'état excité est, par hypothèse, très court devant celui, T_p , de l'état fondamental.

Ces deux propriétés permettent, comme nous le verrons plus loin, de déterminer aisément la solution de l'équation (II, B, 1, b) qui s'écrit (cf. équation II, 18 de J — P1) :

$$\frac{d}{dt} \sigma_{mm'} = \left\{ \begin{aligned} &= \frac{1}{T_p} \sum_{\mu\mu'} \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu' | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | m' \rangle \sigma_{\mu\mu'} \\ &- \Gamma \sigma_{mm'} - i\omega_e(m-m')\sigma_{mm'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{III, C, 1})$$

— L'interprétation physique de (III, C, 1) est très claire. L'évolution globale de l'état excité au cours du temps est déterminée par :

a) L'excitation optique qui, en quelque sorte, « prépare » l'état excité à partir de l'état fondamental (1^{er} terme).

b) L'émission spontanée qui vide l'état excité (2^e terme).

c) L'interaction avec le champ magnétique ; précession de Larmor (3^e terme).

— Nous supposons ici que nous n'effectuons pas la résonance magnétique dans l'état excité, cas sur lequel nous reviendrons à la fin de ce chapitre. Par contre, nous supposons que la « cohérence hertzienne » $\sigma_{\mu\mu'}$ existe initialement dans l'état fondamental et nous étudions les conséquences de cette situation sur l'évolution de l'état excité. Si cette cohérence hertzienne, $\sigma_{\mu\mu'}$, est introduite dans l'état fondamental par un champ de radiofréquence, nous supposons l'amplitude de ce champ suffisamment petite et la durée de vie de l'état excité suffisamment courte pour qu'il n'y ait aucune action directe de ce champ de radiofréquence sur l'état excité.

Rappelons également la condition que nous avons introduite dans le § III, A et qui jouera un rôle important dans la suite de ce travail :

$$\omega_f \gg \frac{1}{T_p} \quad (\text{III, C, 2})$$

(l'effet Zeeman est grand devant la perturbation associée au processus d'absorption).

— Si nous faisons passer dans le 1^{er} membre les 2^e et

3^e termes du 2^e membre de (III, C, 1), nous obtenons une équation différentielle linéaire homogène en $\sigma_{mm'}$ avec second membre :

$$\left. \begin{aligned} &\frac{d}{dt} \sigma_{mm'} + [\Gamma + i(m-m')\omega_e] \sigma_{mm'} \\ &= \frac{1}{T_p} \sum_{\mu\mu'} \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu' | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | m' \rangle \sigma_{\mu\mu'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{III, C, 3})$$

Nous voyons ainsi que l'évolution globale de l'état excité est couplée à celle de l'état fondamental. Pour intégrer (III, C, 3), il faut connaître l'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}$. Il est commode d'écrire $\sigma_{\mu\mu'}$ sous la forme :

$$\sigma_{\mu\mu'} = \mathbf{e}^{-i(\mu-\mu')\omega_f t} \rho_{\mu\mu'}.$$

Nous séparons ainsi la variation principale de $\sigma_{\mu\mu'}$, due à l'interaction avec le champ magnétique et décrite par l'exponentielle $\mathbf{e}^{-i(\mu-\mu')\omega_f t}$ et la variation due au couplage avec le champ de rayonnement, contenue dans $\rho_{\mu\mu'}$. Cette variation se fait avec des constantes de temps de l'ordre de T_p (ce point est démontré rigoureusement dans J — P2).

La solution de l'équation (III, C, 3) sans 2^e membre s'amortit avec une constante de temps $\tau = 1/\Gamma$. Dès que $t - t_0 \gg 1/\Gamma$, le régime transitoire correspondant a disparu. Le 2^e membre de (III, C, 3) est une somme de fonctions oscillant aux fréquences $(\mu - \mu')\omega_f$ et dont l'amplitude $\rho_{\mu\mu'}$ varie avec des constantes de temps T_p . Comme T_p est très long devant le temps propre τ associé à l'équation sans 2^e membre, il est très facile de calculer la solution de (III, C, 3). La solution forcée, oscillant aux fréquences $(\mu - \mu')\omega_f$ et obtenue en considérant tout d'abord $\rho_{\mu\mu'}$ comme une constante, suit le mouvement lent de $\rho_{\mu\mu'}$ parce que $T_p \gg \tau$. On trouve ainsi :

$$\sigma_{mm'}(t) = \frac{1}{T_p} \sum_{\mu\mu'} \frac{\langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu' | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | m' \rangle}{\Gamma + i[(m-m')\omega_e - (\mu-\mu')\omega_f]} \sigma_{\mu\mu'}(t). \quad (\text{III, C, 4})$$

On constate sur l'équation (III, C, 4) que le mouvement de $\sigma_{mm'}(t)$ s'effectue aux fréquences de Larmor $(\mu - \mu')\omega_f$ de l'état fondamental. Il apparaît aussi clairement que l'amplitude et la phase du mouvement de $\sigma_{mm'}$ dépendent du champ magnétique (ω_e , ω_f).

2° Analyse du mouvement angulaire global de l'état excité. — Le fait que l'état excité évolue globalement aux fréquences de Larmor $(\mu - \mu')\omega_f$ de l'état fondamental peut surprendre au premier abord. En effet, si nous considérons un atome particulier, cet atome précesse bien à la fréquence ω_e pendant les séjours qu'il fait dans l'état excité ; mais, à l'instant t un très grand nombre d'atomes se trouvent dans cet état : ce sont ceux que l'excitation optique y a amenés à un instant égal ou antérieur à t et qui ne l'ont pas encore quitté à l'instant t . Il faut déterminer l'état

angulaire individuel de tous ces atomes si l'on veut décrire l'évolution globale de l'état excité à l'instant t .

a) **Mouvement de $\sigma_{mm'}$ induit à partir de celui de $\sigma_{\mu\mu'}$.** — Nous avons rattaché plus haut (cf. § I, A, 3) $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$ à des grandeurs physiques angulaires ($F_z, F_{\pm}, F_{\pm}^2 \dots$). Dans le plan complexe, et en l'absence de tout couplage, $\sigma_{mm'}$ et $\sigma_{\mu\mu'}$ tournent aux fréquences $(m - m')\omega_e$ et $(\mu - \mu')\omega_f$. Nous voulons étudier le mouvement global de la partie de $\sigma_{mm'}$ qui est couplée à $\sigma_{\mu\mu'}$ (le couplage affecte très peu $\sigma_{\mu\mu'}$ qui continue à tourner à la fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$).

Désignons par $d\sigma_{mm'}(t, t')$ la valeur, à l'instant t , de la grandeur $\sigma_{mm'}$ pour ceux des atomes qui, excités dans un petit intervalle de temps dt' au voisinage de l'instant $t' \leq t$ n'ont pas encore quitté l'état excité à l'instant t . L'état angulaire global $\sigma_{mm'}(t)$ est la résultante de tous les $d\sigma_{mm'}(t, t')$ pour $t' \leq t$.

Le déphasage entre $d\sigma_{mm'}(t, t)$ et $\sigma_{\mu\mu'}(t)$ ne dépend que de $\vec{e}_{\lambda_0}$ et ne varie pas au cours du temps. Nous avons en effet :

$$d\sigma_{mm'}(t, t) = \frac{dt}{T_p} \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu' | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | m' \rangle \sigma_{\mu\mu'}(t).$$

Il est donc le même que celui qui existe entre $d\sigma_{mm'}(t - \theta, t - \theta)$ et $\sigma_{\mu\mu'}(t - \theta)$ (voir fig. 7).

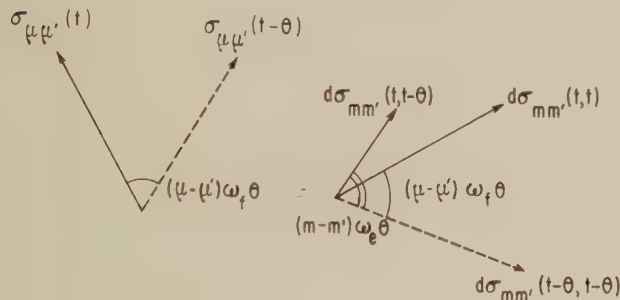


FIG. 7.

L'angle entre $d\sigma_{mm'}(t, t)$ et $d\sigma_{mm'}(t - \theta, t - \theta)$ est donc égal à $(\mu - \mu')\omega_f\theta$.

Entre $t - \theta$ et t , $d\sigma_{mm'}(t - \theta, t - \theta)$ tourne d'un angle $(m - m')\omega_e\theta$; d'autre part, l'émission spontanée a détruit en partie cette grandeur qui se trouve ainsi réduite à l'instant t par le facteur $e^{-\Gamma\theta}$.

$d\sigma_{mm'}(t, t - \theta)$ est donc $e^{-\Gamma\theta}$ fois plus petit que $d\sigma_{mm'}(t, t)$; les deux grandeurs forment entre elles un angle égal à $[(m - m')\omega_e - (\mu - \mu')\omega_f]\theta$.

Pour avoir la valeur globale $\sigma_{mm'}(t)$, nous avons donc à composer un ensemble de vecteurs correspondant aux diverses valeurs de θ et se disposant suivant un éventail. $d\sigma_{mm'}(t, t)$ suit le mouvement de $\sigma_{\mu\mu'}(t)$; il en est donc de même pour l'éventail tout entier. $\sigma_{mm'}(t)$ tourne donc à la même vitesse que $\sigma_{\mu\mu'}(t)$.

Lorsque $(m - m')\omega_e - (\mu - \mu')\omega_f \ll \Gamma$, l'ouverture de cet éventail est très petite. La résultante a sa valeur maximum et est dirigée suivant $d\sigma_{mm'}(t, t)$. Lorsqu'on augmente le champ, l'éventail s'ouvre et tend à devenir isotrope à la limite $(m - m')\omega_e - (\mu - \mu')\omega_f \gg \Gamma$. La résultante $\sigma_{mm'}(t)$ diminue donc et tend vers zéro lorsque le champ augmente; cette résultante tourne également par rapport à $d\sigma_{mm'}(t, t)$ (l'angle de rotation limite est de $\pi/2$).

Cette image permet d'interpréter physiquement tous les termes qui figurent dans l'expression (III, C, 4). En conclusion la partie de $\sigma_{mm'}(t)$ qui provient de $\sigma_{\mu\mu'}(t)$ tourne à la même fréquence que $\sigma_{\mu\mu'}(t)$, c'est-à-dire $(\mu - \mu')\omega_f$. Le déphasage en champ nul de ces deux grandeurs provient uniquement de la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$. Lorsqu'on augmente le champ, l'amplitude de $\sigma_{mm'}$ diminue et tend vers 0; il apparaît un déphasage supplémentaire qui varie de 0 à $\pi/2$.

b) **Analogie avec la théorie des circuits électriques.** — Le résultat précédent peut s'établir encore plus simplement de la façon suivante. La structure mathématique du système (II, B, 1) (système différentiel linéaire à coefficients constants) permet de l'interpréter de façon très imagée en termes de *circuits électriques* (ou *mécaniques*) :

α) Les différents « circuits » $\sigma_{\mu\mu'}$, $\sigma_{mm'}$... ont chacun une *fréquence propre* $(\mu - \mu')\omega_f$, $(m - m')\omega_e$... Ceci résulte des expressions $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$ et $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma_{mm'}$.

β) Les circuits $\sigma_{mm'}$ sont *amortis* avec une constante de temps égale à τ (terme $\frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{mm'}$); les circuits $\sigma_{\mu\mu'}$ avec une constante de temps de l'ordre de T_p (terme $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$). Comme $T_p \gg \tau$, les circuits $\sigma_{mm'}$ sont beaucoup plus amortis que les circuits $\sigma_{\mu\mu'}$.

γ) Les différents circuits $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$ sont *couplés* entre eux (termes $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma_{mm'}$ et $\frac{d^{(2)}}{dt} \sigma_{\mu\mu'}$).

Supposons que nous lançons le circuit $\sigma_{\mu\mu'}$ sur sa fréquence propre, tous les autres circuits étant au repos. Admettons, ce que nous justifierons de façon précise dans le paragraphe suivant D, que l'oscillation de $\sigma_{\mu\mu'}$ est très peu affectée par le couplage (Nous verrons en fait que cette oscillation a sa fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$ légèrement déplacée et qu'elle s'amortit avec une constante de temps de l'ordre de T_p . Ceci résulte de la condition $\omega_f \gg \frac{\Gamma}{T_p}$). Sur un intervalle de temps court devant T_p , mais long devant τ , l'effet du couplage sur $\sigma_{mm'}$ est équivalent à une excitation du circuit $\sigma_{mm'}$ à la fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$. Pour que $\sigma_{mm'}$ puisse « suivre », il faut que la fréquence imposée $(\mu - \mu')\omega_f$ tombe à l'intérieur de sa *bande passante*, qui a une *largeur* $\Gamma = 1/\tau$ et qui est *centrée* autour de la fréquence

$(m - m')\omega_e$. Le fait que les fréquences propres soient différentes entraîne par ailleurs un *déphasage* entre les mouvements de $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$. Toutes les propriétés de l'expression (III, C, 4) se comprennent ainsi aisément.

L'image que nous venons de donner est très générale et s'applique avec succès à tous les effets liés au cycle de pompage optique et qui dépendent du champ magnétique (Les différentes fréquences propres varient en effet avec le champ). Inversement, elle permet de préciser dans quelles conditions un effet varie avec le champ magnétique : lorsqu'un mouvement du moment angulaire dans l'état excité ou fondamental est *induit* par émission ou absorption de photons à partir d'un autre mouvement de *fréquence propre différente*, l'amplitude et la phase du mouvement induit varient avec le champ magnétique.

REMARQUE. — En général $\omega_e \neq \omega_f$. La seule possibilité pour que les fréquences propres soient les mêmes est $m - m' = 0$, $\mu - \mu' = 0$. Le couplage entre les grandeurs *longitudinales* de l'état excité et fondamental est donc le seul qui n'introduise pas d'effets dépendant du champ.

c) **L'effet Hanle.** — L'étude de l'effet Hanle (30) qui est connu depuis fort longtemps peut se faire très simplement à partir des résultats que nous venons d'établir. Elle correspond au cas $\mu = \mu'$, $m \neq m'$.

La « cohérence hertzienne » $\sigma_{mm'}$ introduite dans l'état excité provient alors uniquement du champ de rayonnement. La polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ doit être « cohérente ». L'état excité acquiert un moment angulaire transversal qui provient uniquement de celui du photon absorbé et qui est *fixe* (pour être plus précis, il évolue avec des constantes de temps de l'ordre de T_p , comme il ressort de III, C, 4).

En champ très bas, $(m - m')\omega_e \ll \Gamma$, la direction du moment angulaire transversal de l'état excité est déterminée par la direction correspondante pour le photon. Lorsqu'on augmente le champ, le moment angulaire transversal de l'état excité diminue et sa direction tourne ; ce qui entraîne une *dépolarisation* de la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ et une *rotation du plan de polarisation*. Rappelons que la polarisation $\vec{e}_\lambda$ doit être cohérente si l'on veut que la fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ soit sensible au moment angulaire transversal (« cohérence hertzienne » $\sigma_{mm'}$), de l'état excité (cf. § III, B, 4).

On peut dire encore que l'effet Hanle apparaît comme une excitation à la *fréquence 0* du mouvement angulaire transversal de l'état excité.

d) **Effets du mouvement angulaire transversal de l'état fondamental sur l'évolution de l'état excité.** — Si l'étude précédente permet de retrouver aisément l'effet Hanle, elle laisse prévoir également certains résultats nouveaux relatifs à l'état excité : lorsqu'il

existe un mouvement angulaire transversal global dans l'état fondamental ($\sigma_{\mu\mu'} \neq 0$), ce mouvement peut se transmettre au moment angulaire aussi bien longitudinal que transversal de l'état excité.

α) **Effets sur le moment angulaire longitudinal :**

$$\mu \neq \mu' \quad m = m'.$$

Pour que $\sigma_{\mu\mu'}$ et σ_{mm} soient couplés, il faut que la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ soit « cohérente ». Ceci résulte de l'expression (III, C, 4) et se comprend aisément à partir de la conservation du moment angulaire lors du processus d'absorption. Le moment angulaire *longitudinal* de l'état excité oscille alors à la fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$, pourvu toutefois que ω_f ne soit pas trop grand devant Γ .

Comment détecter cette vibration du moment angulaire *longitudinal* de l'état excité à la fréquence de l'état fondamental ? Le plus simple est d'observer la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ en choisissant pour $\vec{e}_\lambda$ une polarisation non cohérente (π , σ^+ ou σ^-). En effet, dans ce cas, $L_F(\vec{e}_\lambda)$ ne dépend que de σ_{mm} (cf. § III, B, 4), et la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ reflète uniquement celle du moment angulaire longitudinal de l'état excité.

Ce résultat peut paraître évident : la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ étant « cohérente », la lumière absorbée par la vapeur, $L_A(\vec{e}_{\lambda_0})$, est sensible à $\sigma_{\mu\mu'}$ (avec $\mu \neq \mu'$) et est par suite modulée à la fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$ (cf. § III, A, 5) (C'est le phénomène bien connu d'absorption modulée de Dehmelt). La lumière absorbée étant modulée, il semble normal que la lumière réémise $L_F(\vec{e}_\lambda)$ le soit aussi, et à la même fréquence.

En résumé, dans l'expérience que nous venons de décrire, la *cohérence hertzienne* $\sigma_{\mu\mu'}$ de l'état fondamental produit une modulation des *populations* σ_{mm} de l'état excité (il faut pour cela utiliser une excitation en polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ « cohérente »). La lumière de fluorescence, observée en polarisation « non cohérente » $\vec{e}_\lambda$ n'est sensible qu'aux valeurs de σ_{mm} ; elle est donc modulée à la fréquence de l'état *fondamental*. On peut, par suite, détecter les résonances de l'état fondamental à l'aide de la modulation de la lumière absorbée $L_A(\vec{e}_{\lambda_0})$ et de la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$.

Il existe cependant une différence importante entre $L_A(\vec{e}_{\lambda_0})$ et $L_F(\vec{e}_\lambda)$. La modulation à la fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$ de la lumière absorbée ne varie pas avec le champ magnétique H_0 alors qu'il n'en est pas de même pour celle de la lumière réémise (en effet, d'après (III, C, 4), l'amplitude et la phase de la modulation de σ_{mm} varient avec H_0). Ceci provient du fait que l'état excité répond à une excitation donnée avec un retard moyen τ . Il ne peut donc refléter le caractère périodique d'une excitation que si le retard τ n'est pas trop long devant la période $1/\omega_f$ de cette excitation. On peut dire encore, et de façon plus générale, que $L_A(\vec{e}_{\lambda_0})$ détecte le mouve-

ment même de $\sigma_{\mu\mu'}$, alors que $L_F(\vec{e}_\lambda)$ détecte le mouvement induit sur un autre système de fréquence propre différente (nulle dans le cas présent, car $m = m'$).

Les techniques de modulation proposées par Dehmelt pour détecter la résonance magnétique sont donc toujours valables sur l'absorption. En ce qui concerne la fluorescence, la méthode est limitée aux champs faibles. Dans le cas du mercure, le champ critique qui correspond à la condition $\omega_f \sim \Gamma$ est de l'ordre du millier de gauss. La valeur importante de ce champ est due au fait que la structure Zeeman de l'état fondamental est purement nucléaire.

β) Effets sur le moment angulaire transversal :

$$\mu \neq \mu' \quad m \neq m'.$$

Pour simplifier l'interprétation, supposons que la polarisation $\vec{e}_\lambda$ n'est pas cohérente, c'est-à-dire qu'elle est σ^+ , σ^- ou π . Dans ce cas, σ_{mm} n'est pas couplé à $\sigma_{\mu\mu'}$: le moment angulaire longitudinal de l'état excité ne vibre pas. En outre, la lumière absorbée $L_A(\vec{e}_\lambda)$ ne dépend pas de $\sigma_{\mu\mu'}$ (avec $\mu \neq \mu'$) et n'est donc pas modulée. On s'attendrait alors à ce que la lumière de fluorescence ne soit pas modulée. Or, ce n'est pas le cas.

En effet, comme nous l'avons vu plus haut (cf. § III, C, 2), le moment angulaire transversal de l'état excité $\sigma_{mm'}$ exécute un mouvement forcé à la fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$ par suite du couplage avec l'état fondamental. Ce mouvement de $\sigma_{mm'}$ (avec $m \neq m'$) se détecte sur la lumière de fluorescence si la polarisation $\vec{e}_\lambda$ est « cohérente » (cf. § III, B, 4) et la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ reflète alors uniquement ce mouvement angulaire transversal.

En résumé, dans cette deuxième expérience, une excitation en polarisation non cohérente $\vec{e}_\lambda$ fait apparaître une « cohérence hertzienne » $\sigma_{mm'}$ dans l'état excité s'il en existe une, $\sigma_{\mu\mu'}$, dans l'état fondamental. Bien que les populations σ_{mm} de l'état excité ne soient pas modulées, la lumière de fluorescence l'est, et cela, à la fréquence de l'état fondamental, si la détection se fait en polarisation « cohérente » $\vec{e}_\lambda$.

Comme dans le cas α analysé plus haut, le mouvement détecté par $L_F(\vec{e}_\lambda)$ est un mouvement induit. Il varie donc avec le champ et n'est important que si la différence des fréquences propres $(m - m')\omega_e - (\mu - \mu')\omega_f$ n'est pas trop grande devant Γ .

Dans le cas du mercure, $\omega_f \ll \omega_e$. Le champ critique correspond donc à $\omega_e \sim \Gamma$ et est de l'ordre du gauss, c'est-à-dire mille fois plus petit que dans le cas α . Le comportement avec le champ du mouvement induit dans l'état excité doit donc, dans ce cas, être très différent pour la partie longitudinale et pour la partie transversale du moment angulaire. Cela permet de séparer facilement les deux effets.

Nous verrons plus loin que l'expérience confirme bien

l'existence de tous ces phénomènes (modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ à la fréquence ω_f ; variation avec le champ de cette modulation en amplitude et en phase).

REMARQUE. — « Cohérence hertzienne » entre niveaux hyperfins.

Dans le cas où la largeur de la raie excitatrice Δ n'est pas petite devant la structure hyperfine S_H , on peut exciter simultanément les différents niveaux hyperfins de l'état excité. En plus de la cohérence $\sigma_{Fm;Fm'}$ entre sous-niveaux Zeeman appartenant au même niveau hyperfin, il faut également envisager la cohérence entre sous-niveaux Zeeman appartenant à des niveaux hyperfins différents $\sigma_{Fm;F'm'}$.

Cependant, si $S_H \gg \Gamma$, la distance entre les niveaux Fm , $F'm'$ est très grande devant la largeur naturelle Γ des niveaux excités; l'expression donnant $\sigma_{Fm;F'm'}$, et qui est analogue à (III, C, 4) contient alors au dénominateur des quantités du type $\Gamma + iS_H$; $\sigma_{Fm;F'm'}$ peut alors être négligé devant $\sigma_{Fm;Fm'}$. La matrice densité dans l'état excité se décompose en une série de sous-matrices relatives chacune à un sous-niveau hyperfin. Pour faire le calcul du cycle de pompage optique, on peut alors étudier séparément l'effet de chaque composante hyperfine, puis sommer indépendamment sur ces composantes.

(Par contre, si l'on augmente suffisamment le champ, de façon que deux sous-niveaux Fm , $F'm'$ viennent à se croiser, on ne peut plus négliger $\sigma_{Fm;F'm'}$, tout au moins, tant que la distance des deux niveaux Fm , $F'm'$ reste de l'ordre de Γ . Les effets nouveaux liés à l'apparition de cohérence entre les niveaux Fm , $F'm'$ sont les effets de croisement de niveaux découverts par Franken (20)).

REMARQUE. — Pour la raie $2\,537\text{ \AA}$, $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ du mercure, la structure hyperfine dans l'état excité S_H est très grande devant la largeur naturelle Γ .

Par contre, pour la transition $6^1S_0 \leftrightarrow 6^1P_1$ des isotopes impairs du zinc et du cadmium, S_H est de l'ordre de Γ . L'étude théorique et expérimentale de ce cas fait actuellement l'objet d'une étude au laboratoire.

3° Cas d'une résonance magnétique dans l'état excité. — Il faut alors ajouter au 2^e membre de (III, C, 1) un terme $-i[\mathcal{H}_{RF}, \sigma]_{mm'}$ décrivant l'évolution sous l'effet du hamiltonien de radiofréquence $\mathcal{H}_{RF}$.

Le mouvement de $\sigma_{mm'}$ n'est plus alors uniquement un mouvement induit à partir de celui de $\sigma_{\mu\mu'}$. Il peut être excité directement par le champ de radiofréquence $H_1 e^{i\omega t}$. La précession de $\sigma_{mm'}$ se fait alors à la fréquence $(m - m')\omega$.

En pratique, les expériences de résonance magnétique dans l'état excité ont toujours été faites dans des conditions où il n'y a pas de « cohérence hertzienne » $\sigma_{\mu\mu'}$ dans l'état fondamental, et où toutes les populations $\sigma_{\mu\mu}$ des sous-niveaux de cet état sont égales. Les intensités lumineuses excitatrices utilisées étaient trop faibles

pour orienter l'état fondamental. Si l'on tient compte de la relaxation thermique de cet état caractérisée par le temps Θ , on s'est toujours placé dans des cas où :

$$T_p \gg \Theta.$$

Dans ce cas, la matrice densité $\sigma_{\mu\mu'}$ de l'état fondamental est un multiple de la matrice unité et (III, C, 1) s'écrit alors :

$$\frac{d\sigma_{mm'}}{dt} = \frac{\sigma_{mm'}^{(0)}}{T_p} - \Gamma\sigma_{mm'} - i(m - m')\omega_e\sigma_{mm'} - i[\mathcal{H}_{\text{RF}}, \sigma]_{mm'} \quad (\text{III, C, 5})$$

avec :

$$\sigma_{mm'}^{(0)} = \frac{N_0}{2I + 1} \sum_{\mu} \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu \rangle \langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m' \rangle$$

(N_0 est le nombre d'atomes de la vapeur).

Nous renvoyons aux travaux théoriques de Barrat (3) sur les battements lumineux pour l'étude de l'évolution de l'état excité qui est décrite par (III, C, 5). Signalons également qu'il est possible de donner une image physique très simple des effets de cohérence hertzienne introduits par le champ de radiofréquence en se plaçant dans le référentiel tournant à la fréquence ω . Nous renvoyons pour cela à la publication de Brossel (12) citée en référence.

Le cas où l'intensité lumineuse est suffisamment forte pour que l'état fondamental soit orienté ($T_p \leq \Theta$) et où l'on effectue la résonance magnétique à la fois dans l'état excité et dans l'état fondamental (soit que l'on mette deux champs de radiofréquence, soit que l'on mette un seul mais avec une amplitude suffisamment grande et dans un champ directeur H_0 suffisamment bas) n'a jamais été étudié sur le plan théorique et expérimental. Les équations d'évolution *couplées* que nous donnons dans ce travail peuvent servir de base à une telle étude.

D. — Évolution globale de l'état fondamental

1° Résultats théoriques. — Pour avoir l'évolution globale de l'état fondamental $\frac{d}{dt}\sigma_{\mu\mu'}$, il faut ajouter à l'évolution propre $-i(\mu - \mu')\omega_f\sigma_{\mu\mu'}$ les effets de l'excitation optique $\frac{d^{(1)}}{dt}\sigma_{\mu\mu'}$ qui arrache les atomes de l'état fondamental et ceux de l'émission spontanée $\frac{d^{(2)}}{dt}\sigma_{\mu\mu'}$ qui les y fait retourner.

Comme nous l'avons vu plus haut (cf. § III, B, 6), le processus de retombée $\frac{d^{(2)}}{dt}\sigma_{\mu\mu'}$ fait intervenir $\sigma_{mm'}$ avec $m - m' = \mu - \mu'$. Si nous remplaçons $\sigma_{mm'}$ par son expression (III, C, 4) obtenue dans le chapitre pré-

cédent (en remplaçant toutefois les indices μ et μ' par μ'' et μ'''), il vient l'équation (IV, 1) de J — P2 :

$$\left. \begin{aligned} \frac{d}{dt}\sigma_{\mu\mu'} = & - \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \sum_{\mu''} A_{\mu\mu''} \sigma_{\mu''\mu'} \\ & - \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) \sum_{\mu''} \sigma_{\mu\mu''} A_{\mu''\mu'} \\ & + \frac{\Gamma}{T_p} \sum_{\mu''\mu'''} \frac{B_{\mu''\mu'''}^{\mu\mu'}}{\Gamma + i[(\mu - \mu')\omega_e - (\mu'' - \mu''')\omega_f]} \sigma_{\mu''\mu'''} \\ & - i(\mu - \mu')\omega_f \sigma_{\mu\mu'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{III, D, 1})$$

avec :

$$B_{\mu''\mu'''}^{\mu\mu'} = \sum_{\substack{m-m'=\mu-\mu' \\ m, m'}} \langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu'' \rangle \langle \mu''' | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | m' \rangle \quad \left. \begin{aligned} & C_{11}(F, m; m - \mu, \mu) C_{11}(F, m'; m' - \mu', \mu') \end{aligned} \right\} \quad (\text{III, D, 2})$$

On voit ainsi que $\sigma_{\mu\mu'}$ est couplé linéairement à tous les autres éléments de la matrice densité dans l'état fondamental.

On montre dans J — P2 qu'on peut, puisque $\omega_f \gg \frac{1}{T_p}$, négliger dans le 2^e membre de (III, D, 1) tous les termes qui font intervenir $\sigma_{\mu''\mu'''}^{\mu\mu'}$ avec $\mu'' - \mu''' \neq \mu - \mu'$. C'est « l'approximation séculaire ». L'expression (III, D, 1) prend alors une forme plus simple :

$$\left. \begin{aligned} \frac{d}{dt}\sigma_{\mu\mu'} = & - \left[\frac{1}{2T_p} (A_{\mu\mu} + A_{\mu'\mu'}) + i\Delta E' (A_{\mu\mu} - A_{\mu'\mu'}) \right] \sigma_{\mu\mu'} \\ & + \frac{\Gamma}{T_p} \sum_{\substack{\mu''\mu''' \\ \mu - \mu' = \mu'' - \mu'''}} \frac{B_{\mu''\mu'''}^{\mu\mu'}}{\Gamma + i(\mu - \mu')(\omega_e - \omega_f)} \sigma_{\mu''\mu'''} \\ & - i(\mu - \mu')\omega_f \sigma_{\mu\mu'}. \end{aligned} \right\} \quad (\text{III, D, 3})$$

L'erreur commise sur la solution de (III, D, 1) lorsqu'on remplace (III, D, 1) par (III, D, 3) est de l'ordre de $\frac{1}{\omega_f T_p}$.

2° Interprétation physique de l'approximation séculaire. — L'image des circuits électriques qui a été donnée plus haut (cf. § III, C, 2, b) convient très bien pour interpréter physiquement l'équation (III, D, 1) et l'approximation séculaire.

On peut considérer les différents éléments de la matrice densité $\sigma_{\mu\mu'}$ comme représentant des circuits ayant chacun une fréquence propre $(\mu - \mu')\omega_f$. L'effet global du cycle de pompage optique apparaît comme un couplage entre ces différents circuits, ce qui les amortit avec des constantes de temps de l'ordre de T_p . Le couplage entre les circuits $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{\mu''\mu'''}^{\mu\mu'}$ n'est efficace que si leurs bandes passantes se recouvrent. L'écart entre les fréquences propres $[(\mu - \mu') - (\mu'' - \mu''')]\omega_f$,

ne doit donc pas être trop grand devant la bande passante $\frac{1}{T_p}$. Comme par hypothèse $\omega_f \gg \frac{1}{T_p}$, ceci n'est possible que si $\mu - \mu' = \mu'' - \mu'''$.

3° Circulation des populations et de la « cohérence hertzienne » le long du cycle de pompage optique. — Il convient de bien distinguer dans (III, D, 3) les termes provenant du processus d'absorption et ceux provenant du processus d'émission spontanée.

L'absorption ne couple efficacement $\sigma_{\mu\mu'}$ qu'à lui-même (ceci résulte de l'approximation séculaire). Ce couplage est direct et ne varie pas avec le champ.

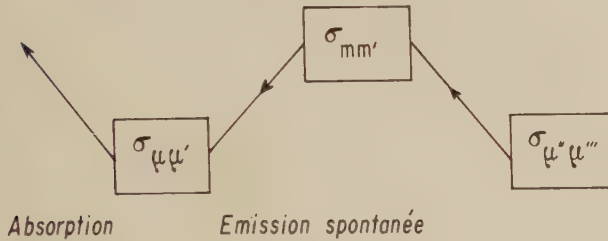


FIG. 8.

L'émission spontanée couple $\sigma_{\mu\mu'}$ à tous les $\sigma_{\mu''\mu''}$ tels que $\mu'' - \mu''' = \mu - \mu'$ (y compris $\sigma_{\mu\mu'}$ lui-même). Ce couplage se fait par l'intermédiaire de l'état excité (fig. 8). L'excitation optique transmet le mouvement de $\sigma_{\mu''\mu''}$ à $\sigma_{mm'}$; ce mouvement se transmet ensuite de $\sigma_{mm'}$ à $\sigma_{\mu\mu'}$ par l'émission spontanée. Les propriétés de l'émission spontanée $m - m' = \mu - \mu'$ et la condition $\mu - \mu' = \mu'' - \mu'''$ entraînent qu'on a, tout au long de la chaîne :

$$\mu'' - \mu''' = m - m' = \mu - \mu'. \quad (\text{III, D, 4})$$

Ce 2^e type de couplage n'est pas direct et varie donc avec le champ. La « transmission » se fait en effet au moyen d'un circuit, $\sigma_{mm'}$, dont la fréquence propre est différente de celle des deux autres (elle n'est la même que si $m - m' = \mu - \mu' = \mu'' - \mu''' = 0$); le circuit $\sigma_{mm'}$ est, par ailleurs, beaucoup plus amorti ($\Gamma = 1/\tau \gg \frac{1}{T_p}$). La transmission ne s'effectue donc que si la fréquence à passer, $(\mu - \mu')\omega_f$, tombe à l'intérieur de la bande passante de $\sigma_{mm'}$; elle s'accompagne également d'un déphasage. Ceci permet de comprendre la signification du terme $\frac{\Gamma}{\Gamma + i(\mu - \mu')(\omega_e - \omega_f)}$ qui, dans l'équation (III, D, 3), figure en plus du coefficient de couplage proprement dit $\frac{B_{\mu''\mu''}^{\mu\mu'}}{T_p}$.

Nous voyons donc que la cohérence hertzienne $\sigma_{\mu\mu'}$, peut comme les populations, *circuler* le long du cycle de pompage optique. La cohérence hertzienne qui est arrachée à l'état fondamental lors de l'absorption n'est pas entièrement perdue pour cet état; elle peut y retourner. On peut dire encore qu'il y a *conservation partielle de la cohérence hertzienne de l'état fondamental au cours du cycle de pompage optique*.

Contrairement à ce qui se passe pour les populations, la circulation de cohérence hertzienne est un effet qui dépend du champ magnétique. Elle n'existe plus lorsque $\omega_e - \omega_f \gg \Gamma$. Ceci est dû au fait que la cohérence hertzienne est liée à des grandeurs angulaires transversales qui ont un *mouvement propre*, la fréquence de ce mouvement étant différente dans l'état excité et dans l'état fondamental.

Plusieurs effets nouveaux relatifs à l'état fondamental découlent de la conservation de la cohérence hertzienne au cours du cycle de pompage. Avant de décrire ces effets, nous allons tout d'abord étudier l'évolution des populations et retrouver les effets habituellement décrits du pompage optique.

4° Évolution des populations. Matrice de pompage optique. Échanges de moment angulaire longitudinal. — Les populations des niveaux μ sont les $\sigma_{\mu\mu}$ qui satisfont à l'équation suivante qui se déduit facilement de (III, D, 3) :

$$\frac{d\sigma_{\mu\mu}}{dt} = -\frac{A_{\mu\mu}}{T_p} \sigma_{\mu\mu} + \frac{1}{T_p} \sum_{\mu'} B_{\mu'\mu}^{\mu\mu'} \sigma_{\mu'\mu'}. \quad (\text{III, D, 5})$$

Posons :

$$P_{\mu' \rightarrow \mu} = \frac{B_{\mu'\mu}^{\mu\mu'}}{T_p} = \frac{1}{T_p} \sum_m |\langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | \mu' \rangle|^2 |C_{II}(F, m; m - \mu, \mu)|^2 \quad (\text{III, D, 6})$$

$\frac{1}{T_p} |\langle \mu' | \vec{e}_{\lambda_0} \vec{D} | m \rangle|^2$ est la probabilité par unité de temps de passage du niveau μ' au niveau m par absorption d'un photon $\vec{e}_{\lambda_0}$. $|C_{II}(F, m; m - \mu, \mu)|^2$ est la probabilité relative de passage d'un niveau m déterminé à l'un des niveaux μ par émission spontanée. $P_{\mu' \rightarrow \mu}$ représente donc la probabilité par unité de temps d'un passage de l'atome du niveau μ' au niveau μ par résonance optique, lorsqu'on l'excite avec la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$.

D'autre part, on sait que : $\sum_{\mu} |C_{II}(F, m; m - \mu, \mu)|^2 = 1$ (règles de somme sur les coefficients de Clebsch-Gordan). On peut donc écrire :

$$\begin{aligned}
\frac{A_{\mu\mu}}{T_p} &= \frac{1}{T_p} \sum_m |\langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu \rangle|^2 \\
&= \frac{1}{T_p} \sum_{m\mu'} |\langle m | \vec{e}_{\lambda_0} \cdot \vec{D} | \mu \rangle|^2 |C_{II}(F, m; m - \mu', \mu')|^2 \\
&= \sum_{\mu'} P_{\mu \rightarrow \mu'}.
\end{aligned}$$

De sorte que, finalement (III, D, 5) peut s'écrire :

$$\frac{d\sigma_{\mu\mu}}{dt} = - \left(\sum_{\mu'} P_{\mu \rightarrow \mu'} \right) \sigma_{\mu\mu} + \sum_{\mu'} P_{\mu' \rightarrow \mu} \sigma_{\mu'\mu'} \quad (\text{III, D, 7})$$

L'interprétation en est alors évidente : la variation de la population $\sigma_{\mu\mu}$ du niveau μ est égale, par unité de temps, à tout ce qui arrive des autres niveaux μ' diminué de tout ce qui part vers les autres niveaux μ' .

La matrice $P_{\mu \rightarrow \mu'}$ est appelée « matrice de pompage optique ». En général $P_{\mu \rightarrow \mu'} \neq P_{\mu' \rightarrow \mu}$. L'état d'équilibre vers lequel tendent les $\sigma_{\mu\mu}$ correspond donc à des différences de populations appréciables entre les sous-niveaux Zeeman. C'est le principe même du pompage optique. En particulier, on voit que si la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est circulaire droite, les atomes ont tendance à s'accumuler dans le sous-niveau de nombre quantique magnétique le plus élevé. Le moment angulaire longitudinal transporté par les photons peut donc se transférer aux atomes.

Les valeurs propres de la matrice $P_{\mu \rightarrow \mu'}$ sont les constantes de temps avec lesquelles les populations $\sigma_{\mu\mu}$ tendent vers leurs valeurs d'équilibre. Ces constantes de temps jouent un rôle important dans l'interprétation des transitoires de pompage optique. Les valeurs d'équilibre des populations sont données par la solution stationnaire de (III, D, 7). Il y a une solution évidente, tous les $\sigma_{\mu\mu}$ égaux à zéro, qui n'a pas de sens physique. Cette solution n'est pas la seule. On peut montrer en effet que le déterminant associé au système (III, D, 7) est nul. Si l'on ajoute à une ligne de ce déterminant toutes les autres, on obtient une ligne formée uniquement de zéros. Cette même propriété entraîne d'ailleurs que :

$$\frac{d}{dt} \sum_{\mu} \sigma_{\mu\mu} = 0.$$

La somme des populations de l'état fondamental reste constante au cours du temps (le nombre d'atomes qui quittent l'état fondamental au cours du temps dt est égal à celui de ceux qui y retournent au cours du même instant). C'est donc uniquement la répartition des populations entre les sous-niveaux Zeeman qui est modifiée globalement par le pompage optique.

5° Évolution de la cohérence hertzienne. Cas de 2 sous-niveaux. — Dans ce cas, qui est, par exemple, celui de l'isotope ^{199}Hg (qui a un spin nucléaire $I = 1/2$), la matrice densité σ ne comporte qu'un seul élément

non diagonal $\sigma_{1/2-1/2}$ (que nous ne distinguons pas de $\sigma_{-1/2 \ 1/2}$ qui en est complexe conjugué).

L'équation (III, D, 3) s'écrit alors :

$$\frac{d\sigma_{1/2-1/2}}{dt} = - \left[\frac{1}{T_2} + i(\omega_f + \varepsilon) \right] \sigma_{1/2-1/2} \quad (\text{III, D, 8})$$

avec :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{1}{T_2} &= \frac{A_{1/2 \ 1/2} + A_{-1/2-1/2}}{2T_p} - \frac{1}{T_p} B_{1/2 \ 1/2}^{1/2} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2} \\ &\quad (\text{III, D, 9, a}) \\ \varepsilon &= \Delta E' (A_{1/2 \ 1/2} - A_{-1/2-1/2}) + \frac{1}{T_p} B_{1/2-1/2}^{1/2} \frac{\Gamma(\omega_e - \omega_f)}{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2} \\ &\quad (\text{III, D, 9, b}) \end{aligned} \right.$$

Le pompage optique amortit donc la précession de Larmor du moment angulaire transversal dans l'état fondamental avec une constante de temps T_2 . La fréquence de cette précession est également déplacée d'une quantité ε .

a) **Interprétation de T_2 .** — $\frac{1}{T_2}$ comprend deux termes. Le premier :

$$\frac{1}{T_2'} = \frac{A_{1/2 \ 1/2} + A_{-1/2-1/2}}{2T_p}$$

est la demi-somme des inverses des durées de vie (dues à l'excitation optique) :

$$\frac{1}{T_{1/2}} = \frac{A_{1/2 \ 1/2}}{T_p} \text{ et } \frac{1}{T_{-1/2}} = \frac{A_{-1/2-1/2}}{T_p}$$

des niveaux $+1/2$ et $-1/2$. Ce terme représente la disparition de la cohérence hertzienne sous l'effet de l'excitation optique qui arrache les atomes à la superposition cohérente dans laquelle ils se trouvent. Il est proportionnel à l'intensité lumineuse $\left(\frac{1}{T_p}\right)$; il dépend de la polarisation ($A_{1/2 \ 1/2}$ et $A_{-1/2-1/2}$) du faisceau lumineux; par contre, il ne dépend pas du champ magnétique.

On peut montrer que le 2^e terme :

$$\frac{1}{T_2''} = \frac{1}{T_p} B_{1/2-1/2}^{1/2} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2}$$

est positif et plus petit que $\frac{1}{T_2'}$ (On montre en effet dans l'appendice 2 de J — P2 que $B_{1/2-1/2}^{1/2}$ est une quantité réelle, positive et inférieure à $\frac{1}{2}(A_{1/2 \ 1/2} + A_{-1/2-1/2})$).

$\frac{1}{T_2''}$ représente donc une *restitution partielle de la cohérence hertzienne* lors du retour à l'état fondamental.

$\frac{1}{T_2''}$ est lié à la circulation de la cohérence hertzienne le long du cycle de pompage et dépend donc du champ magnétique. $\frac{1}{T_2''}$ est nul dès que $\omega_e - \omega_f \gg \Gamma$. Comme $\frac{1}{T_2'}$, $\frac{1}{T_2''}$ est proportionnel à l'intensité lumineuse $\left(\frac{1}{T_p}\right)$ et dépend de la polarisation ($B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$).

L'étude de la variation de $\frac{1}{T_2}$ avec le champ magnétique permet donc de séparer $\frac{1}{T_2'}$ et $\frac{1}{T_2''}$. Nous verrons plus loin que l'expérience permet de vérifier quantitativement la formule (III, D, 9, a).

Lorsqu'on effectue la résonance magnétique entre les sous-niveaux $\pm 1/2$, la largeur « d'origine optique » de la raie de résonance magnétique est $\frac{1}{T_2}$. On voit donc d'après (III, D, 9, a) que cette largeur n'est pas égale à la demi-somme des largeurs $1/T_{1/2} = A_{1/2-1/2}/T_p$ et $1/T_{-1/2} = A_{-1/2-1/2}/T_p$ des deux niveaux $\pm 1/2$. Elle est *plus fine*.

Il y a là une certaine ressemblance avec l'effet de la « diffusion multiple cohérente », bien que les deux phénomènes soient entièrement différents. La conservation de la cohérence hertzienne au cours du cycle de pompage optique fait intervenir le *même atome*. Il est initialement dans un état qui est une superposition cohérente des sous-niveaux de l'état fondamental ; il absorbe un photon et disparaît de l'état fondamental, puis il y retourne, à la fin du cycle de pompage, dans une superposition cohérente qui conserve une « mémoire » de la superposition initiale. Le temps de disparition de la cohérence hertzienne est donc plus long que le temps moyen séparant l'absorption successive de deux photons par le même atome.

Dans le phénomène de diffusion multiple cohérente, un atome A qui se trouve dans une superposition cohérente des sous-niveaux de l'état excité, disparaît de l'état excité par émission spontanée. L'excitation optique se transmet par diffusion multiple à un *autre atome* B qui se trouve porté dans une superposition cohérente des sous-niveaux de l'état excité, conservant une mémoire de celle de l'atome A. Le temps de disparition de la cohérence hertzienne globale dans l'état excité est donc plus long que le temps de vie de l'état excité. C'est ce temps qui est mesuré dans une expérience de double résonance en présence de diffusion multiple.

b) Interprétation de ε . — ε comprend également deux termes. Le premier terme, $\varepsilon' = \Delta E'(A_{1/2-1/2} - A_{-1/2-1/2})$ représente la différence des déplacements, $\Delta E' A_{1/2-1/2}$ et $\Delta E' A_{-1/2-1/2}$, des deux niveaux $\pm 1/2$ dus aux transitions virtuelles induites par le faisceau lumineux. Nous avons analysé ce terme en détail au § III, A.

Le deuxième terme :

$$\varepsilon'' = \frac{1}{T_p} B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2} \frac{\Gamma(\omega_e - \omega_f)}{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2},$$

représente une variation de la fréquence de Larmor de l'état fondamental, due à la circulation de la cohérence hertzienne le long du cycle de pompage optique.

On peut se faire une image très simple de l'origine de ce deuxième effet. Considérons deux atomes identiques, A et B, dans l'état fondamental et supposons que leurs moments angulaires sont parallèles (fig. 9). Ils précessent donc en phase autour du champ magnétique, à la fréquence de Larmor ω_f .

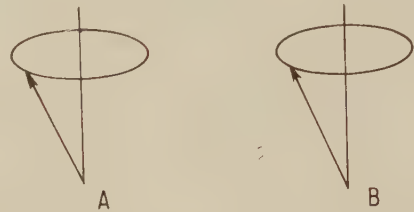


FIG. 9.

Supposons que B absorbe un photon. Pendant le temps τ passé dans l'état excité, le moment angulaire de B précesse autour du champ à la fréquence de Larmor ω_e de l'état excité. En général, $\omega_e \neq \omega_f$. Lorsque B retourne à l'état fondamental, la précession de son moment angulaire transversal n'est plus en phase avec celle de A. Elle a pris de l'avance ou du retard, suivant que $\omega_e - \omega_f$ et ω_f sont de même signe ou non. Si, à des intervalles de temps réguliers, on répète ce cycle de pompage sur B, on voit que la fréquence de Larmor moyenne de B dans l'état fondamental sera différente de celle de A. Elle sera augmentée ou diminuée suivant le signe relatif de $\omega_e - \omega_f$ et ω_f .

Nous voyons ainsi qu'il existe deux types très différents de déplacement de la raie de résonance magnétique causés par le pompage optique :

Le premier type, ε' , est dû aux transitions *virtuelles* induites par le faisceau lumineux. Il est lié directement au processus d'absorption et ne varie pas avec le champ magnétique.

Le deuxième type, ε'' , est lié aux transitions *réelles* de résonance optique (il fait intervenir $\frac{1}{T_p}$ et non $\Delta E'$). Ces transitions réelles modifient la précession de Larmor ω_f de l'état fondamental en la couplant à celle de l'état excité. ε'' est lié à la conservation de la cohérence hertzienne au cours du cycle de pompage et varie donc avec le champ magnétique. ε' et ε'' sont propor-

tionnels à l'intensité lumineuse $\left(\Delta E', \frac{I}{T_p}\right)$; ils dépendent également de la polarisation $(A_{1/2-1/2}, A_{-1/2-1/2}, B_{1/2-1/2})$.

Nous verrons plus loin que l'expérience a permis de vérifier quantitativement dans le cas de ^{199}Hg tous les effets nouveaux que nous venons de décrire.

6° Évolution de la cohérence hertzienne. Cas général. Analogies avec un processus de relaxation thermique. — Lorsque $\omega_e - \omega_f \gg \Gamma$, on peut négliger la retombée de cohérence hertzienne. La résolution de (III, D, 3) est alors très simple car ce système se réduit à :

$$\frac{d\sigma_{\mu\mu'}}{dt} = - \left[\frac{I}{T_{2\mu\mu'}} + i(\mu - \mu')\omega_f + i\varepsilon_{\mu\mu'} \right] \sigma_{\mu\mu'} \quad (\text{III, D, 10})$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{I}{T_{2\mu\mu'}} = \frac{I}{2} \left[\frac{A_{\mu\mu}}{T_p} + \frac{A_{\mu'\mu'}}{T_p} \right] \\ \varepsilon_{\mu\mu'} = \Delta E' (A_{\mu\mu} - A_{\mu'\mu'}) \end{array} \right. \quad (\text{III, D, 11})$$

$\frac{T_p}{A_{\mu\mu}}$ et $A_{\mu\mu} \Delta E'$ s'interprètent alors comme la durée de vie et le déplacement du niveau μ , causés par l'excitation optique.

Lorsqu'on ne peut plus négliger la retombée de « cohérence hertzienne », la résolution du système (III, D, 3) est beaucoup moins simple, car les quantités $\sigma_{\mu\mu'}$, correspondant à une valeur donnée de $\mu - \mu'$ sont couplées entre elles. Il faut alors diagonaliser la matrice associée à ce système différentiel linéaire à coefficients constants. On peut montrer de façon générale que les valeurs propres de cette matrice ont leur partie réelle négative ou nulle (la démonstration mathématique correspondante est donnée dans l'appendice 2 de J — P2). Pour $\mu \neq \mu'$, on peut montrer que la seule solution stationnaire du système différentiel (III, D, 3) est $\sigma_{\mu\mu'} = 0$ (sauf dans le cas très particulier où $A_{\mu\mu} = A_{\mu'\mu'} = 0$). La cohérence hertzienne $\sigma_{\mu\mu'}$ s'amortit donc sous l'effet du pompage optique et tend vers zéro. La fréquence $(\mu - \mu')\omega_f$ est également modifiée sous l'effet des transitions réelles et virtuelles induites par le faisceau lumineux.

Il existe une grande analogie entre la forme des équations (III, D, 3) et celle des équations de relaxation de Bloch-Ayant-Kubo-Tomita (1). Ces équations de relaxation décrivent l'évolution d'un ensemble de spins soumis à une interaction aléatoire avec le réseau qui varie suffisamment vite pour que l'approximation de rétrécissement par le mouvement soit valable. L'approximation séculaire est également utilisée dans ce cas; la condition $\omega_f T_p \gg 1$ s'écrit alors $\omega_f T \gg 1$, où T est le temps de relaxation.

L'effet du pompage optique sur l'état fondamental

de l'ensemble des atomes est donc très voisin de celui d'un processus de relaxation thermique. Quel que soit l'état initial d'où l'on parte, les populations des différents sous-niveaux Zeeman, et la cohérence hertzienne qui existe entre eux tendent vers un état d'équilibre qui ne dépend pas de l'état initial (c'est la solution stationnaire du système différentiel linéaire à coefficients constants (III, D, 3)). Les constantes de temps avec lesquelles cet état d'équilibre est atteint dépendent des caractéristiques du faisceau lumineux (intensité, polarisation...).

On peut donc parler d'une *relaxation optique* longitudinale et transversale.

REMARQUE. — La « relaxation optique » et la relaxation thermique se différencient cependant très nettement sur un point particulier : l'état d'équilibre auquel elles conduisent en ce qui concerne les populations.

Aux températures usuelles où se font les expériences de pompage optique, $\omega_f/kT \ll 1$. Les populations sont donc égalisées par le processus de relaxation thermique $\left(\frac{W_{\mu \rightarrow \mu'}}{W_{\mu' \rightarrow \mu}} = e^{-(E_{\mu'} - E_{\mu})/kT} \simeq 1\right)$; alors qu'elles peuvent être rendues très inégales par la relaxation optique ($P_{\mu \rightarrow \mu'} \neq P_{\mu' \rightarrow \mu}$; voir plus haut § III, D, 4). C'est d'ailleurs le principe même du pompage optique.

7° Possibilités d'un échange de moment angulaire transversal entre les atomes et les photons. — Supposons que nous partions d'un état initial où toutes les populations $\sigma_{\mu\mu}$ sont égales et où il n'y a pas de cohérence hertzienne; $\sigma_{\mu\mu'} = 0$ pour $\mu \neq \mu'$. Le moment angulaire global, aussi bien longitudinal que transversal, de la vapeur est nul à l'instant initial.

Si la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau lumineux est telle que $P_{\mu \rightarrow \mu'} \neq P_{\mu' \rightarrow \mu}$, le pompage optique va créer des différences de populations entre les différents sous-niveaux de l'état fondamental. Il va donc apparaître un moment angulaire longitudinal global pour la vapeur atomique. Par contre, la cohérence hertzienne reste toujours nulle au cours du temps, comme on peut le voir sur les équations (III, D, 3) et ceci, même si la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est cohérente, c'est-à-dire même si les photons excitateurs ont un moment angulaire transversal.

En d'autres termes, dans l'état fondamental, il est impossible de transférer aux atomes le moment angulaire transversal transporté par les photons, alors que ce transfert est toujours possible pour le moment angulaire longitudinal.

Cette différence de comportement se comprend bien physiquement, à partir des idées générales développées dans le présent travail :

Le moment angulaire transversal des photons *ne précesse pas* dans un champ magnétique (*), alors que celui

(*) Cf. § I, B, 4.

des atomes *précède* à la fréquence ω_f . Le faisceau lumineux excite donc de façon statique, à la fréquence zéro, le moment angulaire transversal atomique qui a une fréquence propre différente de zéro et qui est, par ailleurs, amorti avec une constante de temps de l'ordre de T_p . La condition $\omega_f T_p \gg 1$ signifie que la bande passante de largeur $\frac{1}{T_p}$ associée à ce mouvement propre ne contient pas la fréquence zéro. Lorsque cette condition est réalisée, le transfert de moment angulaire transversal est impossible car les fréquences propres de cette grandeur sur l'atome et sur le photon diffèrent d'une quantité supérieure à la bande passante. Le transfert n'est donc possible qu'en champ très bas ($\omega_f T_p \gtrsim 1$). Ces difficultés n'existent pas pour le moment angulaire longitudinal qui a la même fréquence propre, la fréquence zéro, sur l'atome et sur le photon.

Remarquons également que l'état excité est beaucoup plus amorti que l'état fondamental ($\tau \ll T_p$). Les bandes passantes sont beaucoup plus larges. Il doit être par suite beaucoup plus facile de transférer du moment angulaire transversal à l'état excité de l'atome. Ce transfert n'est d'ailleurs rien d'autre que l'effet Hanle qui, comme nous l'avons déjà signalé (cf. § III, C, 2), peut être considéré comme une excitation à la fréquence zéro du moment angulaire transversal de l'état excité.

L'image que nous venons de donner permet également de comprendre très facilement les récentes expériences de modulation de Bloom (7). Ces expériences consistent à éclairer une vapeur par un faisceau lumineux dont la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est *cohérente* et dont on *module* l'intensité lumineuse à la fréquence ω . Lorsque ω est suffisamment voisin de ω_f , on constate l'existence d'une précession du moment angulaire transversal global de la vapeur à la fréquence ω et ceci en l'absence de tout champ de radiofréquence ; l'effet est maximum pour $\omega = \omega_f$. Ceci se comprend très bien : lorsqu'on module l'intensité lumineuse, on module également le moment angulaire transversal transporté par le faisceau lumineux. On introduit alors du moment angulaire transversal dans le système atomique non plus à la fréquence zéro, mais à la fréquence ω . Lorsque :

$$\omega - \omega_f \lesssim \frac{1}{T_p},$$

la fréquence d'excitation tombe à l'intérieur de la bande passante, le transfert de moment angulaire transversal est possible. Il a été également suggéré par Kastler (27) d'exciter la précession du moment angulaire transversal de l'état excité en éclairant la vapeur par un faisceau lumineux de polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ cohérente et modulé à une fréquence ω voisine de ω_e .

L'idée commune à toutes ces expériences est de créer artificiellement une précession du moment angulaire transversal du champ de rayonnement à une fréquence voisine des fréquences propres du système atomique,

de façon à rendre le transfert possible (Au lieu de moduler l'intensité lumineuse, on pourrait également moduler la polarisation en utilisant un polaroïd tournant à une fréquence ω voisine de ω_f ou ω_e).

8° Cas d'une résonance magnétique dans l'état fondamental. — On montre dans J — P2 (cf. chap. V) que, pour avoir l'évolution globale de l'état fondamental, il faut alors ajouter au 2^e membre de (III, D, 3) un terme $-i[\mathcal{H}_{\text{RF}}, \sigma]_{\mu\mu'}$ décrivant l'action du champ de radiofréquence $H_1 e^{i\omega t}$. Le hamiltonien $\mathcal{H}_{\text{RF}}$ s'écrit :

$$\mathcal{H}_{\text{RF}} = \frac{\gamma_f H_1}{2} [I_+ e^{-i\omega t} + I_- e^{i\omega t}] \quad (\text{III, D, 12})$$

(γ_f est le rapport gyromagnétique de l'état fondamental).

Nous supposons l'amplitude H_1 suffisamment petite et la durée de vie τ de l'état excité suffisamment courte pour que $\mathcal{H}_{\text{RF}}$ n'ait aucune action sur l'état excité.

Il est très commode de se placer dans le référentiel R tournant à la fréquence ω autour du champ statique. On montre dans J — P2 que les équations (III, D, 3) restent valables, à condition :

a) De remplacer $\sigma_{\mu\mu'}$ matrice densité de l'état fondamental dans la représentation du laboratoire par $\tilde{\sigma}_{\mu\mu'}$, matrice densité dans le référentiel tournant R :

$$(\tilde{\sigma}_{\mu\mu'} = e^{i(\mu - \mu')\omega t} \sigma_{\mu\mu'}).$$

b) De remplacer le terme d'évolution propre :

$$-i(\mu - \mu')\omega / \sigma_{\mu\mu'}$$

par $-i[\tilde{\mathcal{H}}_{\text{RF}}, \tilde{\sigma}]_{\mu\mu'}$ où :

$$\tilde{\mathcal{H}}_{\text{RF}} = (\omega_f - \omega) I_z + \gamma_f H_1 I_x \quad (\text{III, D, 13})$$

représente l'effet du champ statique et du champ H_1 dans le référentiel R.

c) De remplacer ω_f par ω dans $\Gamma + i(\mu - \mu')(\omega_e - \omega_f)$

d) Les conditions de validité énoncées dans le § III, D doivent être complétées par la condition $\Delta \gg \gamma H_1$ (la durée effective du processus d'absorption est courte devant la période de la précession autour du champ

de radiofréquence). A la condition $\omega_f \gg \frac{1}{T_p}$, il faut également ajouter la condition $\omega_f \gg \gamma H_1$ (la fréquence des raies de résonance magnétique est grande devant la « largeur de radiofréquence » de ces raies).

Lorsqu'on passe dans le référentiel R, on rend le hamiltonien $\mathcal{H}_{\text{RF}}$ indépendant du temps. Tous les coefficients du 2^e membre de (III, D, 3) ne dépendent plus du temps. On peut ainsi étudier plus facilement l'évolution de la matrice densité de l'état fondamental, aussi bien en régime statique que transitoire. On montre également dans J — P2 que les équations d'évolution globale de l'état excité (III, C, 1) et (III, C, 2) restent inchangées ainsi que les expressions (III, A, 1, c) et

(III, B, 1, c) de L_A et L_F . Toutes les interprétations physiques données dans le présent travail demeurent valables.

Il est donc possible d'étudier quantitativement l'évolution de la matrice densité représentant le système atomique dans l'état excité et dans l'état fondamental sous l'action simultanée du pompage optique et d'un

champ de radiofréquence. Si l'on sait décrire, au moins phénoménologiquement l'effet des processus de relaxation thermique, il est alors possible de déterminer complètement l'évolution de $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$. Les signaux de détection optique L_A et L_F s'expriment simplement à partir de $\sigma_{\mu\mu'}$ et $\sigma_{mm'}$, ce qui permet ainsi de « calculer » entièrement une expérience de pompage optique.

CONCLUSION

En conclusion, nous voyons que la théorie quantique du cycle de pompage optique permet d'étudier de façon détaillée les processus élémentaires d'absorption et d'émission de photons de résonance optique par un ensemble d'atomes, ainsi que l'effet global de ces processus sur l'évolution dans le temps du système atomique. Dans le cas de l'isotope ^{199}Hg (qui ne possède que deux sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental et dont l'étude expérimentale est présentée dans la suite de ce travail), la théorie quantique du cycle de pompage optique permet de prévoir les effets nouveaux suivants :

1. Les deux sous-niveaux Zeeman $\pm 1/2$ sont perturbés par le faisceau lumineux qui excite la résonance optique des atomes : ils sont élargis et déplacés. Ces effets apparaissent de façon quantitative dans l'expression (III, D, 8) qui décrit l'évolution globale de la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$.

$$\frac{d\sigma_{1/2-1/2}}{dt} = - \left[\frac{1}{T_2} + i(\omega_f + \varepsilon) \right] \sigma_{1/2-1/2}.$$

— Le terme ε représente une modification de la séparation énergétique entre les deux sous-niveaux Zeeman (ou encore un déplacement d'origine « optique » de la raie de résonance magnétique). Il est lui-même la somme de deux termes $\varepsilon = \varepsilon' + \varepsilon''$; le premier, ε' , représente l'effet des transitions virtuelles induites par le faisceau lumineux, qui mélangent l'état excité et l'état fondamental de l'atome et modifient par suite les énergies de ces états ; le deuxième, ε'' , celui des transitions réelles qui, par suite de la conservation partielle de la cohérence hertzienne au cours du cycle de pompage, ramènent dans l'effet Zeeman de l'état fondamental une partie de l'effet Zeeman de l'état

excité. Le terme ε'' dépend du champ magnétique alors que ε' n'en dépend pas.

— La quantité $\frac{1}{T_2}$ représente l'amortissement de la cohérence hertzienne causé par le faisceau lumineux (ou encore l'élargissement d'origine « optique » de la raie de résonance magnétique). Il comprend lui-même deux termes : $\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2'} - \frac{1}{T_2''}$. Le $\frac{1}{T_2'}$, représente l'effet de l'excitation optique qui détruit la cohérence hertzienne dans l'état fondamental ; le $2e, \frac{1}{T_2''}$, la restitution partielle de cohérence hertzienne lors du retour à l'état fondamental.

ε et $\frac{1}{T_2}$ sont proportionnels à l'intensité lumineuse.

2. L'évolution globale du système atomique dans l'état excité est sensible à la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$ de l'état fondamental. Le moment angulaire global, longitudinal et transversal de l'état excité effectue un mouvement forcé à la fréquence de Larmor de l'état fondamental, ce qui se traduit par une modulation à cette fréquence de la lumière de fluorescence émise par la vapeur. L'amplitude et la phase de ce mouvement forcé dépendent du champ magnétique.

3. Les signaux de détection optique, absorption ou fluorescence, s'expriment simplement en fonction des éléments de la matrice densité qui représente l'ensemble des atomes dans l'état excité et dans l'état fondamental. Comme on sait d'autre part décrire l'évolution dans le temps de cette matrice densité, il est possible d'interpréter quantitativement les différents signaux observés, en particulier, la modulation de la lumière absorbée par la vapeur lorsqu'elle subit la résonance magnétique.

PARTIE EXPÉRIMENTALE

CHAPITRE IV

INTRODUCTION A LA PARTIE EXPÉRIMENTALE

1° Principe général des méthodes utilisées

Parmi les effets nouveaux prévus par la théorie précédente, le plus important est le suivant : les différents sous-niveaux d'énergie d'un atome dans l'état fondamental sont élargis et déplacés lorsqu'un faisceau lumineux excite la résonance optique de cet atome. Nous parlerons du rôle « perturbateur » de la lumière.

Comme nous l'avons déjà souligné (cf. § III, B, 7), ces effets sont petits devant la largeur naturelle Γ du niveau excité. On ne peut donc espérer les observer sur les raies optiques émises par l'atome qui ont une largeur spectrale au moins égale à Γ . Par contre, ils doivent affecter de façon sensible les transitions de radiofréquence qui relient entre eux les différents sous-niveaux de l'état *fondamental* et qui sont considérablement plus fines.

Le premier problème qui se pose est donc d'induire et de détecter ces transitions de radiofréquence dans l'état fondamental. Une fois ce problème résolu, le principe de la vérification expérimentale des effets précédents est très simple : on observe les raies de résonance magnétique entre les sous-niveaux de l'état fondamental. La position et la largeur des raies de résonance observées doivent dépendre de l'intensité de l'irradiation lumineuse de la vapeur, puisque les effets « perturbateurs » prévus dépendent linéairement de cette intensité.

Or, il se trouve que l'une des applications essentielles du pompage optique est de permettre l'observation de la résonance magnétique à la température ambiante et dans un système aussi dilué qu'une vapeur atomique, c'est-à-dire dans des conditions où les procédés de détection radioélectriques habituels de la résonance magnétique ne sont plus assez sensibles. Nous avons donc choisi d'utiliser les méthodes optiques de détection de la résonance magnétique.

Dans nos expériences, l'irradiation lumineuse utilisée peut donc ne comporter que le seul faisceau de pompage optique. Une telle méthode d'exploration présente plusieurs inconvénients. Si l'on veut, en effet, pomper optiquement une vapeur atomique (et cette condition est nécessaire pour l'observation de la résonance magnétique) les caractéristiques du faisceau lumineux (direction, polarisation, répartition spectrale...) ne peuvent être quelconques. Les conditions qui correspondent au

pompage optique le plus efficace, et par suite à la précision la plus grande pour les mesures ne sont pas forcément celles pour lesquelles les effets perturbateurs associés au faisceau lumineux et prévus par la théorie précédente sont les plus grands.

Il nous a donc semblé indispensable d'utiliser une autre méthode d'étude où les deux rôles joués par le faisceau lumineux, rôle d'instrument de mesure (pompage et détection de la résonance) et rôle de « perturbation » sont séparés de façon beaucoup plus nette. Nous utilisons pour cela deux faisceaux lumineux. Le faisceau 1 est choisi de manière à pomper optiquement la vapeur atomique, de la façon la plus efficace possible. Il permet ainsi de tracer avec une bonne précision des courbes de résonance magnétique. C'est ce que nous faisons dans une première étape (fig. 10 a). Puis dans une deuxième étape (fig. 10 b), et sans modifier en quoi que ce soit les caractéristiques du faisceau 1, nous irradions les atomes avec un autre faisceau lumineux, le faisceau 2. Les caractéristiques du faisceau 2 peuvent être alors absolument quelconques puisque le pompage optique de la vapeur est toujours assuré par le faisceau 1. Nous les choisissons de façon à ce que les effets nouveaux prévus par la théorie soient les plus grands possibles. Ces effets se traduisent par un élargissement et un déplacement des raies de résonance magnétique lorsqu'on passe de (a) à (b).



FIG. 10.

Insistons bien sur le fait que le faisceau 1 perturbe lui aussi le système atomique. Mais cette perturbation est la même dans les expériences (a) et (b) puisque les caractéristiques du faisceau 1 ne sont pas changées. Les modifications observées lorsqu'on passe de (a) à (b) proviennent donc uniquement du faisceau 2.

Cette méthode d'étude est très souple. On peut faire varier tous les paramètres du faisceau 2 : direction, polarisation, répartition spectrale... et observer la variation correspondante des différents effets prévus par la théorie.

2° Choix de l'isotope ^{199}Hg

Les expériences que nous décrirons plus loin ont toutes été réalisées sur l'isotope ^{199}Hg . Plusieurs raisons nous ont guidé dans ce choix.

a) ^{199}Hg ne possède que deux sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental.

Ceci simplifie beaucoup les équations du pompage optique que nous avons données dans la première partie de ce travail. La matrice densité dans l'état fondamental ne possède qu'un élément non diagonal $\sigma_{1/2-1/2}$ ($\sigma_{-1/2\ 1/2}$ en est le complexe conjugué). Cet élément représente physiquement le moment angulaire *transversal* global de la vapeur atomique.

Les phénomènes de relaxation thermique sont également très simples à décrire lorsqu'il n'y a que deux sous-niveaux. Cette description peut se faire phénoménologiquement au moyen de deux temps de relaxation, longitudinal et transversal Θ_1 et Θ_2 .

b) Le spin nucléaire de ^{199}Hg étant égal à $1/2$, la raie de résonance optique $6^1\text{S}_0 \leftrightarrow 6^3\text{P}_1$ de cet élément a deux composantes hyperfines. Il se trouve que la raie de résonance de l'isotope pair ^{204}Hg coïncide presque parfaitement avec la composante $1/2$ de ^{199}Hg . En utilisant une lampe remplie de ^{204}Hg , il est donc possible d'exciter sélectivement cette composante hyperfine (C'est ainsi que Cagnac (14) réalisa pour la première fois le pompage optique de ^{199}Hg).

Il est possible également d'exciter sélectivement l'autre composante hyperfine. Il suffit pour cela d'utiliser une lampe remplie de ^{199}Hg (qui émet donc les 2 composantes hyperfines), puis de supprimer la composante $1/2$ au moyen d'un filtre absorbant rempli de ^{204}Hg .

c) Les processus de relaxation thermique sont très faibles. Les temps de relaxation thermique Θ_1 et Θ_2 observés et mesurés par Cagnac sont de l'ordre de la seconde.

Ceci permet d'obtenir des taux d'orientation très élevés et par suite une très bonne valeur du rapport signal sur bruit. D'autre part, les raies de résonance magnétique sont très fines, ce qui permet une *très grande précision* dans le pointé de ces raies.

d) Enfin, la structure Zeeman de l'état fondamental étant purement nucléaire, les fréquences de résonance

magnétique sont très basses (760 Hz pour un champ de 1 gauss). L'observation de la modulation d'un courant photoélectrique à des fréquences aussi basses ne présente aucune difficulté technique.

3° Le montage expérimental

Nous avons utilisé les techniques expérimentales qui venaient d'être mises au point pour l'étude du pompage optique des isotopes impairs du mercure. Nous renvoyons au travail de thèse de Cagnac (14) pour la description détaillée de ces techniques.

L'une des expériences que nous décrirons plus loin a été réalisée sur le montage même de Cagnac. Pour les autres expériences, nous avons été amenés à construire un autre montage, assez semblable au précédent, mais qui présente les particularités suivantes :

a) Le champ magnétique terrestre est compensé. Pour vérifier les effets liés à la circulation de la cohérence hertzienne, nous avons été amenés à opérer dans des champs magnétiques très bas, de l'ordre du champ terrestre.

b) Nous avons développé de façon systématique la détection de la résonance magnétique utilisant la modulation de l'absorption à la fréquence du champ de radio-fréquence (effet Dehmelt) (6) (21). Cette méthode s'est révélée très avantageuse, d'une part, parce qu'elle permet de détecter directement la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$; d'autre part, parce que le rapport signal sur bruit qu'elle permet d'obtenir est très supérieur à celui de la méthode habituelle (14).

Nous reviendrons de façon plus détaillée sur cette méthode de détection lors de la description des diverses expériences.

c) Signalons enfin que nous avons utilisé les films polariseurs pour l'ultra-violet (37) qui ont été mis au point au cours des dernières années et qui sont constitués par un revêtement cristallin déposé sur lame de silice fondue. Ces polariseurs sont nettement moins absorbants à $2\,537\text{ Å}$ que les nicols utilisés par Cagnac et dont les épaisseurs atteignaient près de 10 cm. Ils permettent d'autre part d'utiliser des faisceaux lumineux beaucoup plus ouverts. Le gain d'intensité lumineuse qui en est résulté s'est révélé très précieux pour l'observation des différents effets prévus par la théorie.

CHAPITRE V

ÉTUDE DU DÉPLACEMENT DES RAIES DE RÉSONANCE MAGNÉTIQUE

A. — Mise en évidence du déplacement ϵ' associé aux transitions virtuelles.

1° **Buts de l'expérience.** — Nous décrirons d'abord une expérience (16) qui prouve *qualitativement* l'existence d'un déplacement associé aux transitions *virtuelles* induites par le faisceau lumineux (terme ϵ').

L'expression donnant ϵ' est (cf. § III, D, 5) :

$$\epsilon' = \Delta E' (A_{1/2 \ 1/2} - A_{-1/2 -1/2}) \quad (V, A, 1)$$

(La signification physique des diverses quantités qui figurent dans cette expression a été étudiée en détail dans la partie théorique).

Dans le cas le plus général, le déplacement de la raie de résonance magnétique n'est pas ϵ' mais $\epsilon = \epsilon' + \epsilon''$. Dans l'expérience décrite ci-dessous, nous avons cherché à nous placer dans des conditions où le terme ϵ' qui représente l'effet des transitions virtuelles est très grand devant le terme ϵ'' qui représente celui des transitions réelles. Notons, d'autre part, que ϵ' n'est différent de 0 que si $A_{1/2 \ 1/2} \neq A_{-1/2 -1/2}$.

Les deux conditions importantes auxquelles devra satisfaire le faisceau lumineux dont nous étudions les effets sur les niveaux d'énergie (faisceau 2) sont donc les suivantes :

1° Le faisceau 2 doit induire uniquement des transitions virtuelles $\left(\Delta E' \gg \frac{1}{T_p} \right)$ de façon que ϵ' soit très grand devant ϵ'' (nous cherchons évidemment en plus à donner à ϵ' la valeur la plus grande possible).

2° Sa polarisation doit être telle qu'il déplace de façon *différente* les deux sous-niveaux $+1/2$ et $-1/2$ ($A_{1/2 \ 1/2} \neq A_{-1/2 -1/2}$).

2° **Réalisation de l'expérience.** — a) **Première condition.** — Dans le § III, A, 3, b de la partie théorique, nous avons étudié comme $1/T_p$ et $\Delta E'$ variaient en fonction de l'écart $k_1 - k_0$ entre le centre k_1 de la raie excitatrice et le centre k_0 de la raie d'absorption atomique. Nous avons vu que $\Delta E'$ est nul lorsque $k_1 = k_0$ alors que $1/T_p$ est au contraire maximum pour cette valeur. Par contre, lorsque $k_1 - k_0$ est différent de zéro, $\Delta E'$ a une valeur non nulle qui est maximum lorsque $k_1 - k_0$ est de l'ordre de la largeur Δ de la raie excitatrice (la valeur maximum de $\Delta E'$ est du même ordre de grandeur que celle de $1/T_p$).

La méthode la plus simple consiste donc à utiliser pour le faisceau 2 une lampe remplie d'un isotope autre que l'isotope ^{199}Hg étudié. Par suite du déplacement isotopique, les fréquences optiques émises par cette

source seront différentes des fréquences d'absorption de ^{199}Hg et nous aurons ainsi $k_1 \neq k_0$.

Nous avons choisi l'isotope ^{201}Hg pour remplir la lampe du faisceau 2. La figure 11 représente les positions respectives des différentes composantes hyperfines des deux isotopes ^{199}Hg et ^{201}Hg .

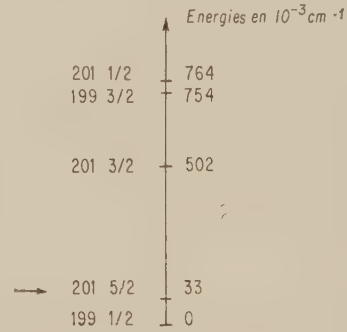


FIG. 11.

Nous voyons sur cette figure que la composante 5/2 de ^{201}Hg est distante d'environ une largeur Doppler de la composante 1/2 de ^{199}Hg (la largeur Doppler Δk_D à la température ambiante est de $34 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$). Si la source émettrice ^{201}Hg du faisceau 2 émet une raie ayant sensiblement la largeur Doppler Δk_D , on a $\Delta \sim \Delta k_D = 34 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1} \simeq k_1 - k_0$; la valeur de $k_1 - k_0$ n'est alors pas trop éloignée de celle qui donne la valeur maximum pour $\Delta E'$. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi ^{201}Hg pour le faisceau 2. Pour les autres isotopes du mercure, les valeurs de $k_1 - k_0$ sont ou trop faibles ($5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ pour le ^{204}Hg), ou trop fortes ($178 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ dans le cas du ^{202}Hg qui est le plus favorable après celui du ^{201}Hg).

Il est clair que l'aile de la composante 5/2 de ^{201}Hg peut provoquer des transitions réelles relatives à la composante 1/2 de ^{199}Hg . Il en est de même (fig. 11) pour la composante 1/2 de ^{201}Hg et la composante 3/2 de ^{199}Hg . Ceci serait une cause d'élargissement optique de la raie de résonance magnétique et de déplacement dû aux transitions réelles (ϵ''), provoqués par le faisceau 2. Nous avons cherché à réduire cette cause au maximum. Dans ce but, et avant qu'il n'arrive sur la cellule de résonance O (fig. 13) qui contient ^{199}Hg , nous faisons traverser au faisceau 2 un filtre F en quartz, de 4 cm d'épaisseur, rempli de ^{199}Hg . Ce filtre F absorbe toutes les fréquences optiques situées dans les ailes des

raies émises par le ^{201}Hg et qui seraient susceptibles d'induire des transitions réelles dans la cellule de résonance.

En résumé, nous voyons qu'on peut réaliser ainsi des conditions expérimentales où les fréquences optiques excitatrices sont *entièrement non résonnantes*, tout en restant suffisamment rapprochées de k_0 pour que la valeur de $\Delta E'$ ne soit pas trop petite (Pour qu'il puisse être observé facilement, il faut en effet que le déplacement ε' ne soit pas petit devant la largeur intrinsèque de la raie de résonance magnétique qui est due, d'une part, à la relaxation thermique, d'autre part à la « relaxation optique » (cf. § III, D, 6) introduite par le faisceau de pompage 1). La première condition imposée au faisceau 2 est ainsi remplie.

Soulignons que le faisceau 2 ne peut effectuer aucun pompage optique puisqu'il n'induit pas de transitions réelles. On ne pourrait donc pas étudier son effet sur les niveaux d'énergie atomiques et démontrer ainsi de façon très nette le rôle des transitions purement virtuelles, si l'on utilisait uniquement ce seul faisceau; ce qui démontre bien l'avantage des méthodes utilisant deux faisceaux.

b) **Deuxième condition.** — La figure 12 représente les niveaux d'énergie de l'isotope ^{199}Hg . k_{01} et k_{02} sont les nombres d'onde des composantes hyperfines $1/2$ et $3/2$ respectivement.

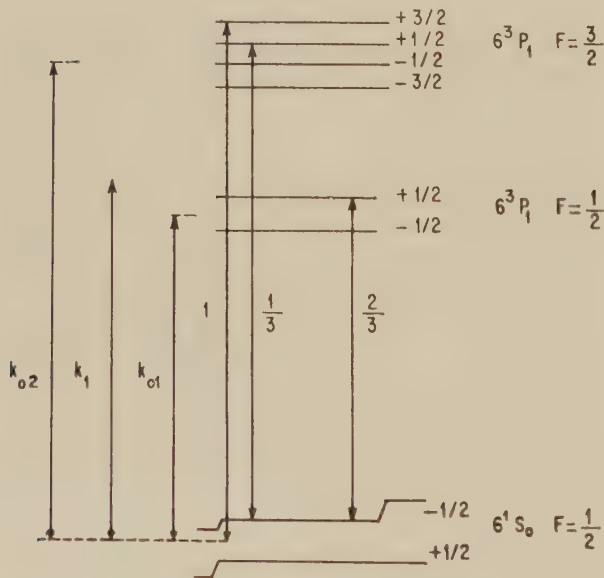


FIG. 12.

Supposons que le faisceau 2 a une *polarisation circulaire droite* (par rapport à H_0) et étudions tout d'abord l'effet des transitions virtuelles induites par la compo-

sante $5/2$ du ^{201}Hg , dont le nombre d'onde k_1 est légèrement *supérieur* à k_{01} (Il est évidemment impossible de faire la figure 12 à l'échelle; les intervalles Zeeman sont très petits devant $k_1 - k_{01}$; les valeurs de $\Delta E'$ sont donc les *mêmes* pour les deux sous-niveaux $+1/2$ et $-1/2$).

Les nombres inscrits sur la figure sont les valeurs des coefficients $A_{\mu\mu'}$, c'est-à-dire les probabilités des transitions optiques en polarisation σ^+ pour chacune des deux composantes hyperfines.

Les transitions virtuelles vers le niveau 6^3P_1 , $F=1/2$ sont caractérisées par $k_1 - k_{02} > 0$. D'après (III, A, 2, b) $\Delta E'$ est *positif* et le déplacement, indiqué sur la partie droite de la figure 12 se fait vers le *haut*. La polarisation utilisée étant circulaire *droite*, $A_{1/2, 1/2} = 0$ et, *seul*, le sous-niveau $-1/2$ est déplacé. La distance entre les deux sous-niveaux $\pm 1/2$ est *augmentée*.

Si, au lieu d'utiliser une polarisation circulaire droite, on utilise une polarisation circulaire gauche (pour le faisceau 2), le déplacement qui conserve la même valeur et le même signe affecte uniquement le sous-niveau $+1/2$ qui est alors déplacé vers le haut. Dans ce cas, la séparation énergétique des deux sous-niveaux dans l'état fondamental est *diminuée*.

Les transitions virtuelles vers l'autre niveau hyperfin 6^3P_1 , $F=3/2$ (k_{02}) créent un déplacement $\Delta E'$ beaucoup plus petit car $k_1 - k_{02}$ est très grand (20 largeurs Doppler). Comme $k_1 - k_{02}$ (et par suite $\Delta E'$) sont *négatifs*, le déplacement, indiqué sur la partie gauche de la figure 12 se fait vers le *bas*. En polarisation σ^+ , il est trois fois plus grand pour le niveau $+1/2$ que pour le niveau $-1/2$ (rapport des probabilités de transition). Comme précédemment, la distance entre les deux sous-niveaux est *augmentée* en polarisation σ^+ , diminuée en polarisation σ^- .

La composante $3/2$ du ^{201}Hg agit dans le même sens que la composante $5/2$ ($k_1 - k_{01} > 0$, $k_1 - k_{02} < 0$) (fig. 11). Quant à la composante $1/2$, elle agit en sens contraire ($k_1 - k_{02} > 0$). Mais son effet est beaucoup plus faible que celui de composante $5/2$ car elle est beaucoup trop proche de la composante $3/2$ de ^{199}Hg ($1/3$ de largeur Doppler). Par surcroît, comme $k_1 - k_{02}$ est inférieur à la largeur Doppler, cette composante est beaucoup plus absorbée par le filtre F qui est placé sur le faisceau 2. Enfin, le poids statistique de la composante $1/2$ est trois fois plus petit que celui de la composante $5/2$ et son intensité dans la source du faisceau 2 est beaucoup plus faible.

En résumé, le signe du déplacement global est celui que l'on obtient en tenant compte uniquement de la composante $5/2$, c'est-à-dire augmentation de la séparation énergétique en polarisation σ^+ , diminution en polarisation σ^- .

Remarques. — Les transitions virtuelles vers les niveaux excités autres que le niveau 6^3P_1 ne modifient pas la séparation énergétique des deux sous-niveaux.

En effet, bien que ce déplacement soit très faible (par suite de l'énorme valeur de $k_1 - k_0$), on peut se demander si en sommant ces petits effets sur la totalité des niveaux excités de l'atome, on n'obtient pas finalement une valeur importante. On peut montrer cependant que ce déplacement est le même pour les deux sous-niveaux $\pm 1/2$. En effet, s'il s'agit d'un niveau excité autre que 6^3P_1 , la variation de $k_1 - k_0$ d'une composante hyperfine de la raie spectrale envisagée à l'autre est très petite devant l'énorme valeur de $k_1 - k_0$. Les valeurs de $\Delta E'$ sont alors les mêmes pour toutes les composantes hyperfines. D'après les règles de somme sur les $A_{\mu\mu}$, on trouve alors aisément que les deux sous-niveaux $\pm 1/2$ sont déplacés de la même quantité.

En d'autres termes, nous ne mesurons pas le déplacement absolu des sous-niveaux de l'état fondamental. Nous mesurons uniquement les déplacements relatifs des différents sous-niveaux entre eux. Pour calculer ces déplacements, il est correct de tenir compte uniquement du niveau excité le plus proche de la raie excitatrice.

Remarquons enfin que l'expérience décrite ici fait appel à la polarisation de la lumière pour déplacer de façon différente deux sous-niveaux Zeeman d'un même niveau hyperfin de l'état fondamental (inégalité des $A_{\mu\mu}$). On peut imaginer d'autres expériences où il n'est pas besoin de faire appel à cette propriété et où l'écart entre les deux niveaux est suffisamment grand pour que $\Delta E'$ varie de l'un à l'autre (cas des deux niveaux hyperfins d'un atome alcalin dans l'état fondamental).

c) Le dispositif expérimental. — Il est représenté sur la figure 13. C'est celui utilisé par Cagnac (14).

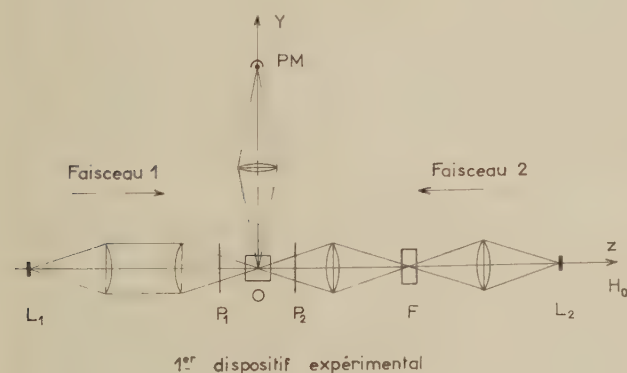


FIG. 13.

Nous n'avons pas modifié le faisceau 1 qui est le faisceau de pompage optique. La lampe L_1 de ce faisceau est remplie avec l'isotope ^{204}Hg qui excite sélectivement la composante $1/2$ de ^{199}Hg . Le faisceau 1 a une polarisation σ^+ qui lui est donnée par P_1 (polaroïd plus lame quart d'onde). Il effectue donc le pompage

optique des atomes et les concentre dans le sous-niveau $+1/2$. La lumière de fluorescence observée au moyen d'un photomultiplicateur dans la direction Oy perpendiculaire au champ magnétique H_0 est directement proportionnelle à la population $\sigma_{-1/2-1/2}$ du sous-niveau $-1/2$. Toute variation de cette population, en particulier celle causée par le champ de radiofréquence, se détecte donc par une variation d'intensité de la lumière de fluorescence, ce qui permet le tracé des courbes de résonance magnétique. Nous avons opéré à une fréquence fixe de 5 kHz, obtenue par démultiplication à partir d'un quartz de 100 kHz. Les courbes de résonance magnétique étaient tracées en faisant varier le champ magnétique et en repérant les valeurs du courant magnétisant au moyen d'un potentiomètre de Leeds-Northrup.

Dans l'axe du champ magnétique et dans le sens opposé à celui du faisceau de pompage optique, nous avons disposé le faisceau 2. La lampe L_2 est remplie avec l'isotope ^{201}Hg . On en forme une image intermédiaire sur le filtre F qui est rempli avec l'isotope ^{199}Hg . La lumière ainsi filtrée est ensuite concentrée sur la cellule de résonance O après avoir acquis au moyen de P_2 la polarisation σ^+ ou σ^- .

3° Résultats de l'expérience. — La figure 14 montre un exemple des courbes expérimentales obtenues. La courbe de résonance magnétique du centre est prise avec le faisceau 2 masqué, celle de gauche (et de droite) en présence du faisceau 2 polarisé σ^+ (et σ^-).

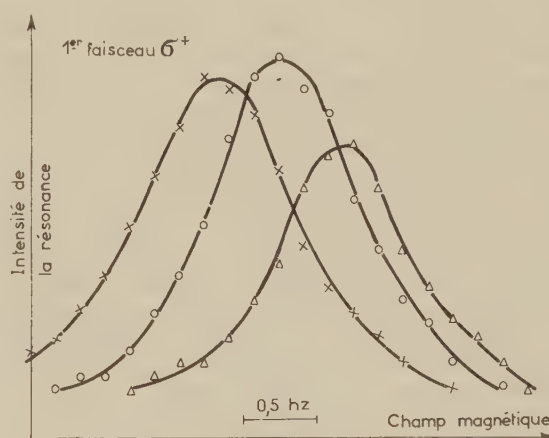


FIG. 14.

- Sans 2^e faisceau.
- × 2^e faisceau σ^+ .
- △ 2^e faisceau σ^- .

Nous voyons que le faisceau 2 produit un déplacement de la raie de résonance magnétique. Ce déplacement vaut environ 0,4 Hz. Il a le signe attendu. En effet, comme nous opérons à fréquence fixe, un déplacement

vers les différences d'énergie plus grandes correspond à un déplacement vers les champs plus bas. Lorsque le faisceau 2 a la polarisation σ^+ , nous avons vu plus haut que la séparation énergétique des deux sous-niveaux était augmentée. La courbe de résonance magnétique doit donc être déplacée vers les champs bas, ce qui est bien confirmé expérimentalement. Nous avons également vérifié qu'il n'y avait plus de déplacement quand on enlevait la lame quart d'onde, c'est-à-dire quand on éclairait avec un mélange de σ^+ et σ^- . Enfin, nous nous sommes assurés que le déplacement était proportionnel à l'intensité lumineuse.

Notons que les raies de résonance magnétique ne sont pas élargies par le faisceau 2. Ceci est dû au caractère purement virtuel des transitions qu'il induit. On remarque également sur la figure 14 que l'intensité de la résonance est un peu plus faible lorsque les deux faisceaux ont des polarisations opposées, σ^+ pour le premier, σ^- pour le deuxième. En effet, dans ce cas, les atomes sont accumulés par le faisceau 1 dans le sous-niveau $+1/2$ et la vapeur est particulièrement absorbante pour toute fraction du faisceau 2 susceptible de provoquer des transitions réelles et que le filtre à ^{199}Hg n'absorberait pas entièrement. D'où un affaiblissement de la détection de la résonance. L'effet observé est donc lié à une absorption imparfaite par le filtre F. Nous avons vérifié cette interprétation en opérant avec des filtres à ^{199}Hg moins absorbants, ce qui augmente la dissymétrie. D'autre part, nous avons inversé le sens de la dissymétrie en pompant avec le faisceau 1 en σ^- et non plus en σ^+ .

Conclusion. — En conclusion, nous voyons que l'expérience précédente permet de prouver que les sous-niveaux de l'état fondamental peuvent être déplacés lorsque des transitions virtuelles de résonance optique sont induites par un faisceau lumineux.

Nous reviendrons plus loin sur la vérification quantitative des formules relatives à ε' (§ C du présent chapitre). Nous verrons qu'il est nécessaire d'améliorer la sensibilité de la détection pour y parvenir. Les méthodes correspondantes seront analysées lors de la description des expériences que nous entreprenons maintenant et qui concernent la mise en évidence du déplacement ε'' dû aux transitions réelles induites par l'excitation lumineuse.

B. — Mise en évidence du déplacement ε'' associé aux transitions réelles

1^o Buts de l'expérience (18). — Il s'agit de prouver l'existence d'un déplacement énergétique associé aux transitions réelles (terme ε''). Rappelons l'expression de ε'' :

$$\varepsilon'' = \frac{1}{\Gamma_p} B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2} \frac{\Gamma(\omega_e - \omega_f)}{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2} \quad (\text{V, B, I})$$

La signification physique des différentes quantités qui figurent dans l'expression précédente a été étudiée dans la partie théorique (§ III, D, 5). Soulignons simplement qu'à l'inverse de ε' , ε'' dépend du champ magnétique (ω_e, ω_f) (ε'' est lié en effet à la conservation de la cohérence hertzienne au cours du cycle de pompage optique).

2^o Réalisation. — a) Afin d'observer uniquement le terme ε'' , nous essayons maintenant de rendre $\frac{1}{\Gamma_p}$ le plus grand possible et $\Delta E'$ le plus petit possible. — Nous cherchons pour cela à faire coïncider au mieux la raie excitatrice k_1 et la raie d'absorption k_{01} . Nous avons utilisé pour le faisceau 2 soit une lampe à ^{204}Hg pour exciter la composante $1/2$ de ^{199}Hg ($k_1 - k_{01}$ est alors égal à $5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$, c'est-à-dire à $1/7$ de largeur Doppler $\Delta E'$ est alors très faible), soit une lampe à ^{199}Hg suivie d'un filtre à ^{204}Hg (on excite alors uniquement la composante $3/2$ et on a dans ce cas $k_1 = k_{02}$ et $\Delta E' = 0$). Par surcroît, nous choisissons la direction du faisceau 2 perpendiculaire à celle de H_0 . On peut voir dans ces conditions que l'on a toujours $A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2}$ quelle que soit la polarisation du faisceau 2 : ε' est alors toujours nul et le déplacement observé ε provient uniquement de ε'' .

b) Le dispositif expérimental. — Il est représenté sur la figure 15.

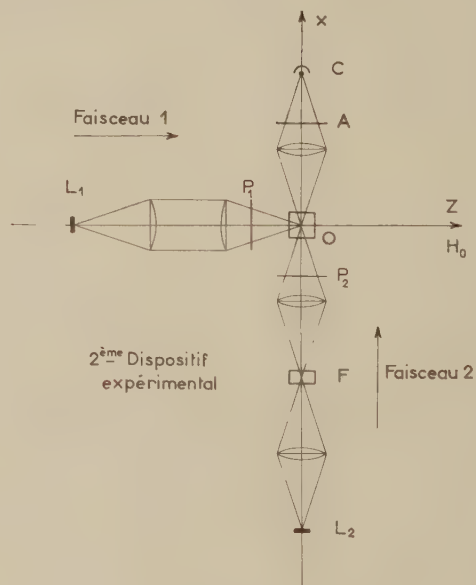


FIG. 15.

Le faisceau 1 est comme précédemment le faisceau de pompage. Il présente les mêmes caractéristiques que dans l'expérience décrite au § A. Il est dirigé suivant l'axe Oz.

Le faisceau 2 est dirigé suivant l'axe Ox . Le photomultiplicateur, non représenté sur la figure 15, est sur l'axe Oy , perpendiculaire à Ox et à Oz . Il permet de détecter la lumière de fluorescence.

Fixons pour le moment notre attention sur la partie du faisceau 2 comprise entre L_2 et O . Suivant que l'on veut exciter la composante $1/2$ ou la composante $3/2$ de ^{199}Hg , la lampe L_2 est une lampe à ^{204}Hg , auquel cas le filtre F est supprimé, ou une lampe à ^{199}Hg auquel cas le filtre F rempli de ^{204}Hg est utilisé. P_2 permet de donner au faisceau 2 soit une polarisation circulaire droite ou gauche par rapport à Ox , soit une polarisation linéaire (la direction de polarisation peut être choisie arbitrairement dans le plan perpendiculaire à Ox ; si elle est parallèle à Oz , c'est la polarisation π ; si elle est perpendiculaire à Oz , nous l'appelons polarisation σ).

c) **Détection de la résonance magnétique.** — L'idée la plus simple pour détecter la résonance magnétique consiste à observer, comme dans l'expérience relative aux transitions virtuelles (§ A), la lumière de fluorescence émise dans la direction Oy perpendiculaire à Oz et Ox . Cependant, nous nous heurtons ici à certaines difficultés qui n'existaient pas dans cette expérience.

Tout d'abord, le faisceau 2 diminue la différence des populations que le faisceau 1 permet d'obtenir entre les deux sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental. En effet, par suite de sa direction, on a toujours pour le faisceau 2, $P_{1/2 \rightarrow -1/2} = P_{-1/2 \rightarrow 1/2}$ (La définition des $P_{\mu \rightarrow \mu'}$ est donnée dans III, D, 4). La « relaxation longitudinale optique » associée au faisceau 2 est alors tout à fait semblable à une relaxation thermique puisqu'elle tend à égaliser les deux populations. L'intensité des raies de résonance magnétique, qui est proportionnelle à la différence des populations $\sigma_{1/2 \ 1/2} - \sigma_{-1/2 \ -1/2}$ est donc réduite par le faisceau 2.

Le faisceau 2 élargit d'autre part les raies de résonance magnétique puisqu'il détruit la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2 \ -1/2}$ (en effet, $\frac{1}{T_p}$ étant différent de zéro, il en est de même pour $\frac{1}{T_2}$). Cet élargissement entraîne une réduction supplémentaire de l'intensité des raies de résonance magnétique.

Enfin, le faisceau 2 donne naissance à une lumière de fluorescence dans la direction Oy . Le signal correspondant ne varie pas lorsqu'on effectue la résonance magnétique puisque $A_{1/2 \ 1/2} = A_{-1/2 \ -1/2}$. Il contribue uniquement à augmenter le fond continu (qui engendre son propre bruit) sur lequel se détache la courbe de résonance magnétique et à diminuer par suite la valeur du rapport signal sur bruit.

Il est clair que ces difficultés n'existaient pas dans l'expérience relative aux transitions virtuelles (§ A). $\frac{1}{T_p}$ étant nul, il n'y avait pas de relaxation optique,

aussi bien longitudinale que transversale et il n'y avait pas non plus de lumière de fluorescence.

Dans l'expérience présente, nous avons alors utilisé un autre procédé de détection qui s'est révélé beaucoup plus précis. Au moyen d'une cellule photoélectrique C (en fait un photomultiplicateur RCA 1P28 monté avec 3 dynodes seulement), nous observons la lumière du faisceau 2 transmise par la cellule de résonance (fig. 15).

Supposons tout d'abord que la polarisation donnée par P_2 au faisceau 2 soit la polarisation circulaire droite (ou gauche) par rapport à Ox . Comme nous l'avons déjà vu (§ III, A, 5), le signal mesuré par C est alors sensible à la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2 \ -1/2}$, ce qui se traduit par une modulation du courant photoélectrique à la fréquence $\omega/2\pi$ du champ de radiofréquence (en effet, la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau 2 est « cohérente »; on a $A_{1/2 \ -1/2} \neq 0$ et la lumière absorbée $L_A(\vec{e}_{\lambda_0})$ dépend de $\sigma_{1/2 \ -1/2}$ (cf. § III, A, 5)).

Si par contre, la polarisation du faisceau 2 est une polarisation linéaire, on peut montrer (cf. appendice) que $A_{1/2 \ -1/2} = 0$: le courant photoélectrique de C n'est pas modulé. Nous disposons alors devant C un analyseur circulaire droit A qui permet de sélectionner la composante circulaire droite de la lumière transmise par la cellule de résonance. Le signal mesuré par C redevient sensible à $\sigma_{1/2 \ -1/2}$ (cf. appendice) et l'on observe une modulation du courant photoélectrique de C (avec un analyseur circulaire gauche, on observerait une modulation en opposition de phase avec la précédente). On peut enfin ne pas polariser du tout le faisceau 2 en enlevant P_2 (lumière naturelle). La lumière absorbée par la cellule de résonance n'est pas modulée ($A_{1/2 \ -1/2} = 0$). L'emploi de l'analyseur A devant C permet là encore d'obtenir un signal proportionnel à $\sigma_{1/2 \ -1/2}$.

En résumé, quelle que soit la polarisation du faisceau 2, il est toujours possible d'observer un signal modulé dont l'amplitude est directement proportionnelle à $\sigma_{1/2 \ -1/2}$. Ce signal varie lorsqu'on décrit la raie de résonance magnétique (en balayant le champ H_0) et peut donc être utilisé pour la détection de la résonance.

Les avantages de ce deuxième procédé de détection sont les suivants :

α) Ce type de détection utilise la *totalité de la lumière* du faisceau 2, qui est très grande si on la compare à l'intensité de la fluorescence mesurée par PM (fig. 13). Le courant photoélectrique i_c , au voisinage de la photocathode de C est donc très grand par rapport au courant i_p du photomultiplicateur PM au voisinage de la photocathode. Le rapport signal sur bruit est égal à $\sqrt{i_c}$ dans un cas, $\sqrt{i_p}$ dans l'autre. On voit donc que si μ est le coefficient d'amplification, tel que $i_c = \mu i_p$, cette deuxième méthode permet de gagner un facteur $\sqrt{\mu}$.

β) Le spectre de bruit des sources lumineuses est

particulièrement fort vers les très basses fréquences (inférieures à 10 Hz) par suite des instabilités thermiques, des dérives lentes... L'utilisation d'un amplificateur sélectif à bande passante très étroite pour amplifier le signal de modulation à la fréquence ω permet de sortir de cette zone de bruit intense.

γ) Lorsqu'on est loin de la résonance, $\sigma_{1/2-1/2} = 0$; le signal de modulation est nul. La raie de résonance magnétique se détache donc sur « fond noir », ce qui élimine tous les ennuis dus à la variation du zéro et que l'on rencontre dans la 1^{re} méthode.

Nous avons constaté effectivement en utilisant le présent type de détection que le rapport signal sur bruit était nettement meilleur, ce qui permet d'effectuer les mesures plus rapidement et plus facilement.

En résumé, nous voyons que dans l'expérience actuelle, le faisceau 2 joue un double rôle; il perturbe tout d'abord les niveaux d'énergie atomiques par suite des transitions réelles qu'il induit dans la cellule de résonance; il permet d'autre part de détecter la résonance magnétique. Ce rôle était rempli dans l'expérience décrite au § A par le faisceau 1. Le rôle essentiel du faisceau 1 est par contre toujours le même. Créer par pompage optique une différence de populations entre les deux sous-niveaux $\pm 1/2$, condition indispensable pour que l'on puisse effectuer la résonance magnétique.

Remarque. — Le faisceau 2 étant utilisé pour la détection, nous modifions donc légèrement le schéma général indiqué dans l'introduction à la partie expérimentale et représenté sur la figure 10.

Les deux étapes (a) et (b) ne correspondent plus à l'absence et à la présence du faisceau 2, mais à deux valeurs très différentes de l'intensité lumineuse du faisceau 2. Dans la deuxième partie (b) de l'expérience, nous utilisons l'intensité maximum I du faisceau 2; dans la première partie (a), l'intensité $1/5$. Les modifications observées lorsqu'on passe de (a) à (b) représentent donc les $4/5$ des effets associés au faisceau 2.

3° Résultats de l'expérience. — La figure 16 montre un exemple des courbes expérimentales obtenues dans les conditions suivantes: la composante hyperfine excitée sélectivement est la composante $3/2$; le faisceau 2 n'est pas polarisé. La courbe de droite correspond à l'intensité lumineuse I (la plus grande possible) pour le faisceau 2; la courbe de gauche à l'intensité $1/5$ (tous les autres paramètres physiques sont les mêmes pour les deux courbes).

Nous constatons que le faisceau 2 produit un déplacement de la raie de résonance magnétique. Le déplacement se fait vers les champs forts, ce qui correspond à un ralentissement de la pulsation ω_f . Le signe de ε'' est donc correct car, dans le cas de l'isotope ^{199}Hg , $\omega_e - \omega_f$ et ω_f sont de signes contraires,

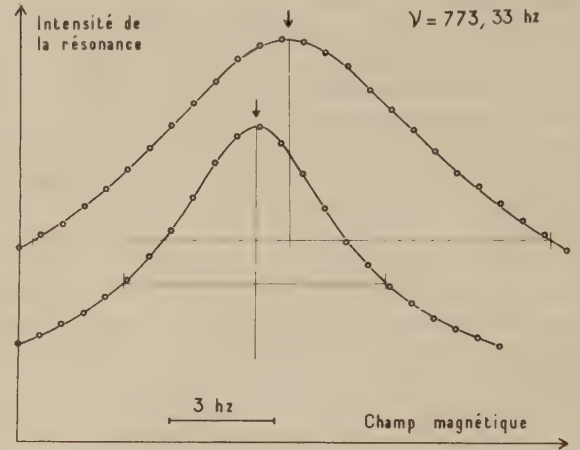


FIG. 16.

Nous constatons également que le faisceau 2 *élargit* la raie de résonance magnétique. Ceci est dû au caractère réel des transitions qu'il induit (rappelons qu'un tel élargissement n'existait pas dans l'expérience décrite au § A car le faisceau 2 induisait alors des transitions virtuelles).

Nous nous sommes assurés que ε'' était proportionnel à l'intensité lumineuse (fig. 17).

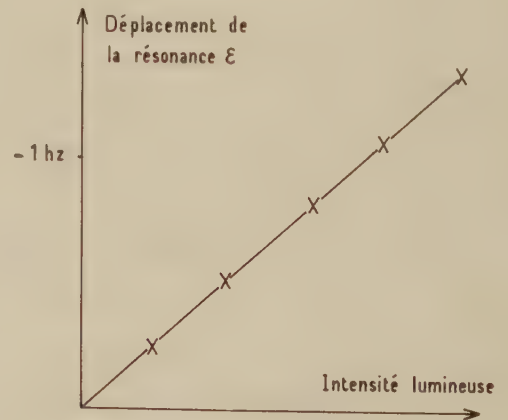


FIG. 17.

Nous verrons plus loin (chap. VI) comment on peut mesurer expérimentalement la valeur de $\frac{I}{T_p}$ (lié au faisceau 2) par des études de phénomènes transitoires (En fait, on ne mesure pas $\frac{I}{T_p}$, mais $\frac{I}{T_2}$ qui est l'amortissement d'origine optique de la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$). L'expression théorique III, D, 9, a de $\frac{I}{T_2}$ permet d'en

déduire la valeur de $\frac{1}{T_p}$). Une fois $\frac{1}{T_p}$ connu, toutes les quantités qui figurent dans l'expression $(V, B, 1)$ de ε'' sont connues. Il est alors possible de prévoir grâce à la formule $(V, B, 1)$ la valeur *théorique* de l'écart entre les deux courbes. Cette valeur calculée est représentée sur la figure 16 par l'écart entre les deux flèches et est en très bon accord avec la valeur observée.

La variation de ε'' avec le champ magnétique, décrite par le terme $\Gamma(\omega_e - \omega_f)/\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2$ de l'expression $(V, B, 1)$ a été également étudiée en mesurant la valeur du déplacement pour différentes valeurs de la fréquence de résonance magnétique $\omega_f/2\pi$ (les caractéristiques du faisceau 2, qui interviennent dans $\frac{1}{T_p}$ et $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$, demeurant constantes). La figure 18 montre les résultats de cette étude qui a été faite pour chacune des deux composantes hyperfines $1/2$ et $3/2$ de ^{199}Hg .

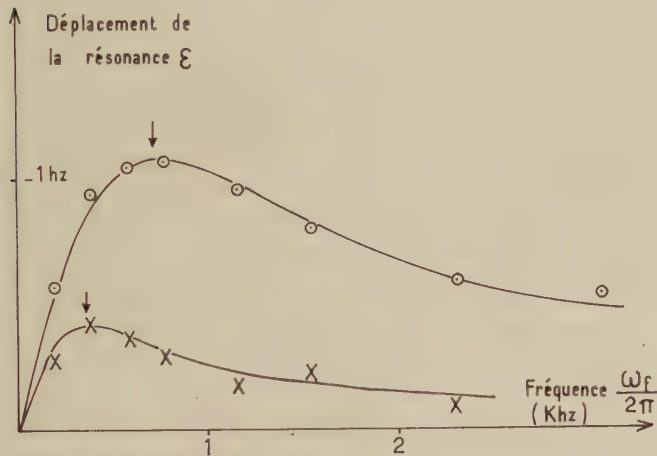


FIG. 18.

{ ○ Composante $\frac{3}{2}$.
 { × Composante $\frac{1}{2}$.

Les prévisions théoriques sont confirmées de façon quantitative. Les courbes de la figure 18 sont calculées à partir de la formule $(V, B, 1)$; les points sont les points expérimentaux. Il est à noter que les abscisses des deux maxima indiqués par des flèches sont dans un rapport 2, ce qui correspond bien au rapport 2 existant entre les facteurs de Landé des deux niveaux hyperfins de l'état excité (Le maximum de chaque courbe correspond en effet à $\Gamma = \omega_e - \omega_f$ et l'on a $\omega_e \gg \omega_f$).

Enfin, nous avons étudié l'effet de la polarisation, lié dans la formule $(V, B, 1)$ au terme $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$. Les déplacements observés en polarisation π ou σ , ou en lumière naturelle, pour chacune des deux composantes hyperfines, sont en très bon accord avec les valeurs

théoriques. En particulier, pour la composante $1/2$, en polarisation σ , le déplacement est nul conformément à la théorie (Nous donnons en appendice les valeurs de $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$ pour chacune des polarisations étudiées et pour chacune des deux composantes hyperfines).

En conclusion, nous voyons que l'expérience confirme bien l'existence d'un déplacement associé aux transitions réelles de résonance optique et qu'elle permet de vérifier quantitativement l'expression théorique $(V, B, 1)$ de ce déplacement.

C. — Étude de la variation de $\Delta E'$ et $1/T_p$ avec $k_1 - k_0$

1° Buts de l'expérience. — Nous avons décrit aux § A et B les expériences prouvant l'existence de déplacements associés respectivement aux termes ε' et ε'' . L'emploi d'une méthode de mesure qui permet de détecter directement la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$ et d'améliorer considérablement la précision et la rapidité des mesures, nous a permis de vérifier quantitativement l'expression théorique donnant ε'' .

Il nous a semblé important alors de reprendre l'étude du terme ε' en utilisant ce procédé de détection afin notamment de déterminer la variation de $\Delta E'$ avec l'écart $k_1 - k_0$ entre la raie excitatrice et la raie d'absorption. L'étude théorique de cette variation a été donnée plus haut (cf. § III, A, 3). Nous rappellerons simplement ici que la courbe qui représente les variations de $\Delta E'$ en fonction de $k_1 - k_0$ ressemble à une courbe de dispersion, alors que celle qui représente la variation de $\frac{1}{T_p}$ ressemble à une courbe d'absorption (voir fig. 5). Il est intéressant de vérifier expérimentalement cette propriété qui nous a permis de faire un parallèle entre les effets sur les niveaux d'énergie atomiques, représentés par $\frac{1}{T_p}$ et $\Delta E'$ et les effets bien connus d'absorption et de dispersion anormale.

2° Réalisation de l'expérience. — *a) Schéma général.* — Le dispositif auquel on peut songer tout d'abord pour effectuer cette expérience est le suivant :

On utilise trois faisceaux lumineux (fig. 19). Le fais-

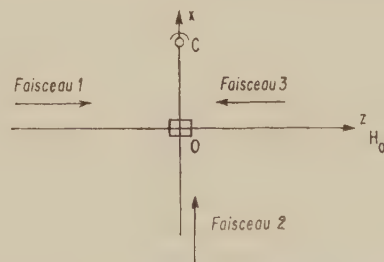


FIG. 19.

ceau 1 effectuée comme précédemment le pompage optique de la vapeur. Le faisceau 2 joue uniquement un rôle de détection. La cellule photoélectrique C permet d'observer la modulation de l'absorption de ce faisceau par la cellule de résonance O ; nous avons déjà dit les avantages de ce procédé. Le faisceau 3 est celui dont on étudie les effets perturbateurs sur les niveaux d'énergie atomiques. On trace donc des courbes de résonance magnétique en l'absence et en présence du faisceau 3 sans modifier en quoi que ce soit les caractéristiques des faisceaux 1 et 2.

b) Méthode utilisée pour faire varier k_1 . — Pour réaliser notre présent programme, il faut pouvoir également faire varier la position k_1 du centre de la raie excitatrice émise par le faisceau 3 sans modifier aucune autre de ses caractéristiques de façon à étudier la variation de $\Delta E'$ et $\frac{1}{T_p}$ relatifs à ce faisceau 3 avec $k_1 - k_0$.

— Pour faire varier k_1 on peut envisager d'utiliser les déplacements Zeeman des raies émises par une source lumineuse lorsque cette source est placée dans un champ magnétique. On peut prendre par exemple une lampe remplie avec l'isotope ^{198}Hg ou ^{202}Hg (l'effet Zeeman des isotopes pairs est beaucoup plus simple que celui des isotopes impairs).

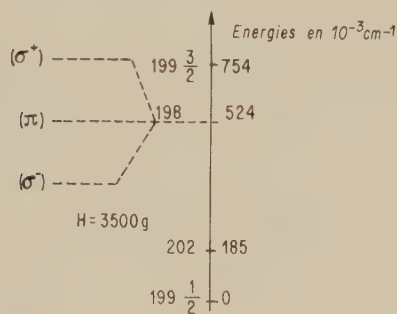


FIG. 20.

Un champ de l'ordre de 3 500 (ou 2 500) gauss permet d'amener l'une des composantes Zeeman σ de ^{198}Hg (ou ^{202}Hg) au voisinage de la composante 3/2 (ou 1/2) de ^{199}Hg , les deux autres composantes Zeeman de l'isotope pair restant suffisamment loin des composantes 1/2 et 3/2 de ^{199}Hg pour que leur effet soit négligeable.

Il se trouve cependant qu'il est très difficile de faire fonctionner correctement les sources lumineuses que nous utilisons dans des champs magnétiques aussi intenses (par suite probablement de l'effet de ce champ sur le mouvement des particules chargées, électrons et ions, au sein du plasma qui nous sert de source). Le fonctionnement de ces sources étant très sensible au champ magnétique, il est impossible de faire varier k_1 sans modifier également et de façon incontrôlable, les

autres caractéristiques de la raie excitatrice (largeur, intensité...).

— Aussi, il nous a semblé préférable d'utiliser une autre méthode, qui utilise le balayage magnétique d'une raie d'absorption plutôt que celui d'une raie d'émission.

Nous utilisons pour le faisceau 3 une lampe à ^{199}Hg . La figure (21, a) représente la composante 3/2 émise par cette source, qui est centrée autour de k_{02} et dont nous savons qu'elle est large (quelques largeurs Doppler).

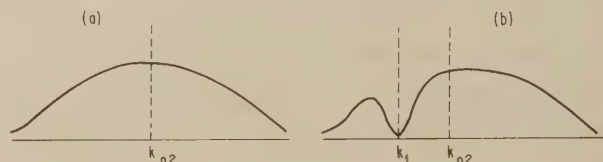


FIG. 21.

Nous faisons traverser au faisceau 3 un filtre à ^{198}Hg qui est placé dans un champ magnétique H. Par suite de l'effet Zeeman (fig 20), un tel filtre possède trois raies d'absorption. Si le centre k_1 de l'une de ces raies est suffisamment voisin de k_{02} , la répartition spectrale de la composante 3/2 est modifiée après traversée du filtre (fig. 21, b). En faisant varier le champ H, nous pouvons faire varier la position du creux qui est ainsi formé dans la répartition spectrale de la composante ^{199}Hg , 3/2 du faisceau 3. Notons que la composante 1/2, par contre, n'est pas altérée.

La répartition spectrale de la figure 21, a ne crée pas de déplacement $\Delta E'$ parce qu'elle est symétrique autour de k_{02} . Il n'en est pas de même pour la répartition spectrale 21, b. La relation reliant $\Delta E'$ et $u(k)$ étant linéaire (formule III, A, 2, b), la valeur de $\Delta E'$ associée à la répartition 21, b provient uniquement de la raie d'absorption que nous y avons produite ; de façon plus précise, la différence entre la répartition 21, b et 21, a joue le rôle de $u(k)$ dans la formule III, A, 2, b, ce qui permet de calculer $\Delta E'$.

Cette deuxième méthode permet d'éviter les ennuis que l'on rencontre lorsqu'on place une lampe émettrice dans un champ magnétique intense. Elle conduit à des effets entièrement calculables si l'on connaît la forme de raie excitatrice 21, a et les caractéristiques du filtre. Son inconvénient le plus grand est qu'elle n'est utilisable que pour les valeurs de $k_1 - k_{02}$ inférieures ou égales à la largeur de la répartition 21, a.

c) Comment séparer ϵ' et ϵ'' . — Nous voyons sur la figure 21, b que l'intensité lumineuse excitatrice du faisceau 3 n'est, en général, pas nulle au voisinage de k_{02} . Le faisceau 3 peut donc induire des transitions

réelles et il faut trouver un moyen de distinguer dans le déplacement total observé ε les contributions de ε' et de ε'' .

Nous utilisons pour cela la remarque suivante : nous avons vu plus haut que ε' se transforme en $-\varepsilon'$ lorsqu'on passe de la polarisation σ^+ à la polarisation σ^- ; par contre ε'' ne change pas, les valeurs de $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$ étant égales pour ces deux polarisations (cf. appendice). Plutôt que de tracer des courbes de résonance magnétique en l'absence et en présence du faisceau 3, nous mesurons la position de la résonance pour les états de polarisation σ^+ et σ^- de ce faisceau (tous les autres paramètres demeurant inchangés). Le déplacement observé est égal à $2\varepsilon'$.

Cette méthode présente un autre avantage, celui de rendre le faisceau 1 de la figure 19 inutile. En effet, on peut utiliser la composante 1/2 émise par la lampe à ^{199}Hg du faisceau 3 pour effectuer le pompage. Il est clair que le déplacement observé lorsqu'on passe de σ^+ à σ^- provient uniquement de la composante 3/2. La composante 1/2 est beaucoup trop éloignée pour être affectée par le filtre à ^{198}Hg et demeure toujours symétrique par rapport à k_{01} . Elle ne contribue pas à la valeur de ε' .

En résumé, nous voyons que les deux rôles distincts attribués aux deux faisceaux 1 et 3 de la figure 19 peuvent être remplis par les deux composantes hyperfines émises par la lampe à ^{199}Hg du faisceau 3.

d) Le dispositif expérimental. — En résumé, le schéma initial représenté sur la figure 19 peut être simplifié considérablement : les faisceaux 1 et 3 sont remplacés par un seul faisceau qui est le faisceau 1 de la figure 22.

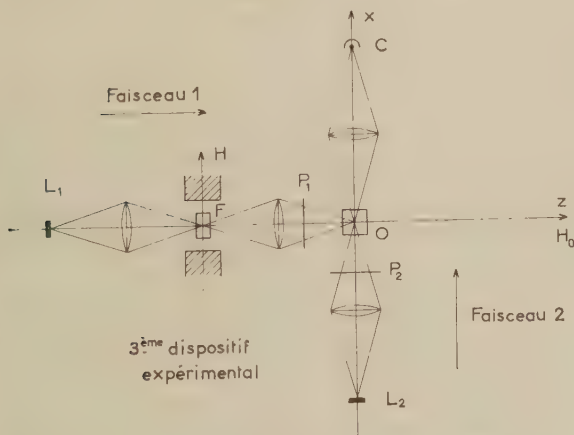


FIG. 22.

La lampe L_1 est une lampe à ^{199}Hg ; on en forme une image intermédiaire sur un filtre F rempli de ^{198}Hg , qui est placé dans l'entrefer d'un électroaimant donnant

un champ de l'ordre de 4 000 gauss. La lumière transmise par F est ensuite concentrée sur la cellule de résonance O après avoir acquis au moyen de P_1 la polarisation circulaire droite ou gauche (P_1 est un polariseur circulaire constitué par un polaroïd suivi d'une lame quart d'onde. La direction du polaroïd correspondant à la transmission de lumière doit être perpendiculaire à la direction H du champ de l'électroaimant. En effet, le filtre F n'est absorbant que pour cette direction de polarisation, perpendiculaire à H , comme on peut s'en rendre aisément compte à partir des symétries de l'effet Zeeman. Pour passer de σ^+ à σ^- , il suffit de tourner la lame quart d'onde de 90°). Comme nous l'avons vu, la composante 1/2 émise par L_1 joue le rôle du faisceau 1 de la figure 19; le champ H est réglé de façon que l'une des raies d'absorption de ^{198}Hg tombe à l'intérieur de la composante 3/2 (fig. 21, *b*) et cette composante joue le rôle du faisceau 3 de la figure 19.

Le faisceau 2 est le faisceau de détection. La lampe L_2 est une lampe à ^{204}Hg . La polarisation donnée par P_2 est la polarisation circulaire droite par rapport à Ox . Comme le faisceau 2 sert uniquement à la détection, son intensité est prise la plus faible possible afin de réduire au maximum la relaxation « optique » associée.

On se fixe une certaine valeur de H (c'est-à-dire une certaine valeur de $k_1 - k_{02}$). On mesure le déplacement de la raie de résonance magnétique, $2\varepsilon'$, lorsque la polarisation du faisceau 1 est changée de σ^+ en σ^- .

3° Résultats. — La variation de $2\varepsilon'$ (donc de $\Delta E'$) avec $k_1 - k_{02}$ est représentée par la courbe en trait plein de la figure 23.

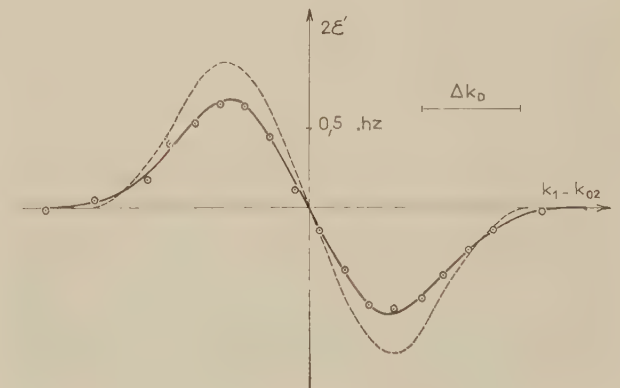


FIG. 23.

On voit que $2\varepsilon'$ change de signe lorsque $k_1 - k_{02}$ change de signe. La forme de la courbe est celle d'une courbe de dispersion (nous nous sommes assurés que le signe de $2\varepsilon'$ était correct). Les prévisions théoriques sont donc vérifiées qualitativement (la vérification quantitative sera discutée un peu plus loin).

Nous avons pu également observer la variation de $\frac{I}{T_p}$ avec $k_1 - k_{02}$. Pour cela nous mesurons (par des techniques de transitoires qui seront décrites dans le chapitre VI) la constante de temps τ_2 avec laquelle la cohérence hertzienne s'amortit. Cet amortissement est causé par la relaxation transversale « optique » (T_2) et thermique (Θ_2). Comme il n'y a aucune corrélation entre ces deux types de relaxation, on a $\frac{I}{\tau_2} = \frac{I}{T_2} + \frac{I}{\Theta_2}$. Lorsqu'on fait varier $k_1 - k_{02}$, Θ_2 ne varie pas ; la variation observée de $\frac{I}{\tau_2}$ reflète donc uniquement la variation de $\frac{I}{T_2}$ et, par suite, celle de $\frac{I}{T_p}$ puisque $\frac{I}{T_2}$ est proportionnel à $\frac{I}{T_p}$ (formule III, D, 9, a) et que nous opérons à une fréquence ω_f bien déterminée.

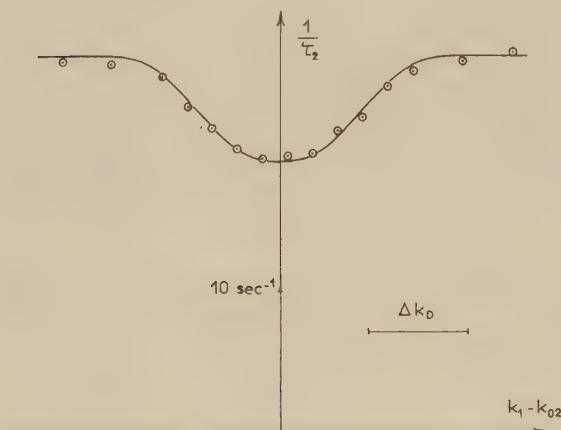


FIG. 24.

La figure 24 montre les résultats expérimentaux. Nous constatons que la courbe représentant la variation de $\frac{I}{\tau_2}$ (donc $\frac{I}{T_p}$) a la forme d'une courbe d'absorption. Le signe de la variation est correct. En effet, lorsque k_1 s'approche de k_{02} , le filtre à ^{198}Hg absorbe dans la composante 3/2 les fréquences optiques qui sont les plus efficaces pour les transitions réelles ; T_p doit donc s'allonger et, par suite $\frac{I}{\tau_2}$ doit diminuer.

En résumé, nous voyons que les prévisions théoriques concernant l'allure des variations de $\Delta E'$ et de $\frac{I}{T_p}$ avec $k_1 - k_{02}$ sont bien confirmées.

4° Étude quantitative des résultats expérimentaux.

— Nous avons cherché à voir dans quelle mesure il y a accord quantitatif entre les prévisions théoriques et les

résultats expérimentaux représentés sur les figures 23 et 24.

Il est nécessaire pour cela de connaître la forme exacte de la raie 3/2 émise par la lampe à ^{199}Hg , L_1 , ainsi que la courbe de transmission du filtre F. Afin d'éviter des calculs numériques très longs, nous avons adopté pour effectuer le calcul théorique un modèle très simple, et à coup sûr très grossier, pour représenter ces deux courbes. Nous supposons que la raie excitatrice 3/2 émise par la source a la forme d'un créneau, symétrique par rapport à k_{02} , de largeur δ_1 et d'intensité I_0 (fig. 25).

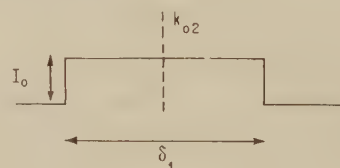


FIG. 25.

Quant au filtre F, nous supposons qu'il est totalement opaque pour les fréquences comprises dans une bande de largeur δ_2 centrée autour de k_1 , parfaitement transparent à l'extérieur (fig. 26).

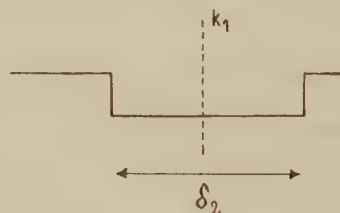


FIG. 26.

Ce modèle est très schématique. Il nous a semblé cependant que le choix d'un modèle plus près de la réalité et plus compliqué ne serait justifié que si l'on effectuait en même temps une mesure très précise de la forme de raie excitatrice au moyen d'un appareil dispersif à très haute résolution.

Nous allons expliquer maintenant comment nous déterminons les valeurs de δ_1 , δ_2 , I_0 qui correspondent le mieux aux conditions de l'expérience actuelle.

a) Détermination de δ_2 . — Connaissant l'épaisseur et la température du filtre F, on peut calculer exactement la forme de sa courbe de transmission. C'est la courbe en trait plein de la figure 27. Nous remplaçons cette courbe exacte par le créneau qui s'en rapproche le plus (en pointillé sur la figure) ; ce qui nous permet de déterminer δ_2 (la largeur Doppler Δk_D à la température ordinaire est représentée pour indiquer l'échelle).

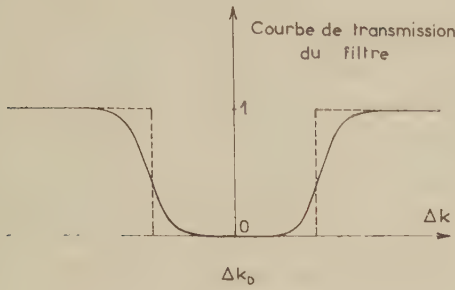


FIG. 27.



FIG. 28.

b) **Détermination de δ_1 .** — Étudions maintenant comment avec le modèle choisi, la lumière émise par la source (fig. 25) et absorbée par le filtre F (fig. 26) varie avec l'écart $k_1 - k_{02}$. L'absorption est maximum et reste constante tant que le créneau d'absorption du filtre reste à l'intérieur de la raie excitatrice, c'est-à-dire tant que $|k_1 - k_{02}| \leq \frac{\delta_1 - \delta_2}{2}$. Puis l'absorption décroît linéairement avec $k_1 - k_{02}$ pour :

$$\frac{\delta_1 - \delta_2}{2} \leq |k_1 - k_{02}| \leq \frac{\delta_1 + \delta_2}{2}.$$

Elle est nulle pour $|k_1 - k_{02}| \geq \frac{\delta_1 + \delta_2}{2}$. La variation de l'absorption avec $k_1 - k_{02}$ a donc la forme d'un trapèze (courbe en trait pointillé de la figure 28). On peut comparer les conclusions de ce modèle avec ce que donne, en fait, l'expérience : la valeur de δ_1 que nous choisissons est celle qui permet de se rapprocher au mieux de la courbe expérimentale. Cette dernière est représentée en trait plein sur la figure 28. Elle a été obtenue, dans une expérience préliminaire, en observant au moyen d'une cellule photoélectrique placée immédiatement après le filtre F, la variation de la lumière transmise par ce filtre en fonction de $k_1 - k_{02}$. Nous effectuons ainsi en quelque sorte l'analyse de la raie excitatrice par balayage magnétique (il est surprenant de constater la qualité de l'accord entre les conclusions du modèle précédent et l'expérience !).

c) **Détermination de I_0 .** — A ce stade, le seul paramètre qui nous manque est la constante I_0 . Prenant les valeurs

précédentes de δ_1 et δ_2 , nous connaissons, dans le cadre du modèle précédent, pour chaque valeur de $k_1 - k_{02}$, la forme exacte de la raie excitatrice après filtrage par F. Nous pouvons donc calculer, par intégration graphique, les valeurs des intégrales qui figurent dans les expressions (III, A, 2) et déterminer par suite $\frac{I}{T_p}$ et $\Delta E'$, à une constante multiplicative près, I_0 .

Il est clair qu'il suffit d'une seule valeur expérimentale supplémentaire pour déterminer I_0 ; par exemple, la valeur de la variation de $\frac{I}{T_p}$ à résonance ($k_1 = k_{02}$). La théorie permet alors de calculer tout le reste de la courbe donnant $\frac{I}{T_p}$ en fonction de $k_1 - k_{02}$ et celle donnant $\Delta E'$ en fonction de $k_1 - k_{02}$ (Il est évident que l'on pourrait au contraire déterminer I_0 à partir d'un point de la courbe $\Delta E'$ et en déduire, sans aucun ajustement supplémentaire, le reste de la courbe $\Delta E'(k_1 - k_{02})$ et la courbe $\frac{I}{T_p}(k_1 - k_{02})$).

Nous avons choisi de nous servir d'un point de la courbe 24 représentant la variation de $\frac{I}{T_p}$ avec $k_1 - k_{02}$ pour déterminer la valeur de I_0 . En effet, comme nous l'avons déjà souligné plus haut, la variation de $\frac{I}{T_p}$ qui apparaît sur la figure 24 est due uniquement à la variation de $\frac{I}{T_2}$. L'expression théorique reliant $\frac{I}{T_2}$

à $\frac{I}{T_p}$ (III, D, 9, a) permet d'en déduire la variation correspondante de $\frac{I}{T_p}$. Pour calculer $\frac{I}{T_p}$ à partir de la raie excitatrice, nous utilisons la formule théorique (III, A, 2, a) (Notons qu'il est nécessaire d'effectuer en plus la moyenne par rapport aux vitesses intervenant dans l'effet Doppler $\vec{k}_0 \cdot \vec{v}$; en effet, l'expression (III, A, 2, a) est établie pour une valeur bien déterminée de la vitesse de l'atome $\vec{v}$. Lorsque nous moyennons sur l'ensemble des atomes de la vapeur, il faut tenir compte de la répartition maxwellienne des vitesses).

La courbe de la figure 24 est calculée à partir des valeurs choisies comme nous venons de l'expliquer pour δ_1 , δ_2 , I_0 . Les points sont les points expérimentaux. L'accord est très bon.

d) **Calcul de la courbe donnant $\Delta E'$ en fonction de $k_1 - k_{02}$.** — Si nous calculons maintenant entièrement, et sans aucun ajustement, la courbe représentant les variations de $2\varepsilon'$ avec $k_1 - k_{02}$, nous obtenons la courbe en pointillé de la figure 23.

Le désaccord observé est de l'ordre de 35 p. 100. Étant donné le caractère schématisé du modèle choisi pour représenter la forme de raie excitatrice et la courbe

de transmission du filtre, nous pouvons estimer que l'expérience permet de vérifier quantitativement les expressions théoriques (III, A, 2, a) et (III, A, 2, b) de $\frac{1}{T_p}$ et $\Delta E'$.

En procédant dans l'ordre inverse (détermination de I_0 à partir d'un point de $\Delta E'$) on peut s'assurer que la forme de la courbe prévue pour $\Delta E'$ coïncide bien avec celle de la courbe expérimentale, sauf pour les grandes valeurs de $|k_1 - k_{02}|$. Il suffit pour s'en rendre compte de faire une affinité sur la courbe en pointillé de la figure 23. Le désaccord pour les grandes valeurs de $|k_1 - k_{02}|$ se comprend bien puisque le modèle choisi défavorise les ailes de la raie excitatrice alors que $\Delta E'$ est très sensible aux fréquences optiques contenues dans ces ailes (transitions virtuelles).

Signalons enfin que l'on peut expliquer en partie le sens du désaccord observé entre les courbes théorique et expérimentale de la figure 23. Les polariseurs pour l'ultra-violet que nous utilisons ne donnent pas en effet une polarisation totale. Au lieu d'avoir une polarisation σ^+ pure, nous avons, pour fixer les idées, un mélange renfermant 95 p. 100 de σ^+ et 5 p. 100 de σ^- . Les valeurs de $1/T_2$ provenant de ces deux polarisations s'ajoutent ; par contre, les valeurs de ε' se retranchent puisque le signe de ε' est différent en σ^+ et en σ^- . Toute imperfection du polariseur diminue donc la valeur mesurée pour $\Delta E'$ alors qu'elle n'affecte pas celle de $1/T_p$.

D. — Conséquences pratiques

L'étude expérimentale décrite dans ce chapitre nous a permis de vérifier en détail les prévisions théoriques concernant les déplacements ε' et ε'' : nous avons démontré l'effet perturbateur de la lumière sur la position des niveaux d'énergie atomiques.

Envisagés du point de vue de l'électrodynamique quantique, de tels effets sont intéressants car ils sont étroitement liés au problème de l'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement. Lorsqu'on effectue, par contre, une expérience de pompage optique pour déterminer de façon précise une structure atomique dans l'état fondamental, de tels effets sont gênants car ils représentent une perturbation du système étudié, l'atome, par le faisceau lumineux qui peut être considéré en quelque sorte comme l'instrument de mesure puisqu'il permet à la fois de créer l'orientation atomique et de détecter la résonance magnétique.

Aussi, il nous semble important de résumer dans ce paragraphe les conditions pour lesquelles les déplacements ε' et ε'' sont les plus petits possibles.

1° Précautions à prendre pour réduire au maximum les déplacements ε' et ε'' . — a) Cas du déplacement ε' . — Il faut éviter au maximum tout décalage

entre les fréquences optiques excitatrices émises par la source, k_1 , et les fréquences d'absorption atomiques, k_0 , de l'élément contenu dans la cellule de résonance. Des décalages de l'ordre de la largeur Doppler sont à éviter tout particulièrement car ils correspondent à la valeur maximum de $\Delta E'$.

Les origines d'un tel décalage entre k_1 et k_0 peuvent être variées : nous ne reviendrons pas sur le déplacement isotopique des raies optiques émises par deux isotopes différents (que nous avons justement utilisé pour mettre ε' en évidence) : il faut éviter d'opérer avec des mélanges d'isotopes dans la lampe émettrice. Une autre cause importante est constituée par la présence d'un gaz étranger dans la lampe émettrice ou dans la cellule de résonance. Il est bien connu en effet que les raies optiques émises par un atome sont élargies, rendues asymétriques et déplacées lorsque cet atome subit des collisions contre un gaz étranger (30) (les lampes à mercure que nous avons utilisées contenaient une pression de 3 mm d'argon, ce qui, dans le cas de la raie 2 537 Å du mercure, correspond à un déplacement des raies optiques de l'ordre de $0,6 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$. Ce déplacement est petit devant la largeur Doppler ($34 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$) et n'est, par suite, pas gênant).

— Il importe de souligner que $\Delta E'$ peut être différent de zéro même lorsque toutes les précautions ont été prises pour éviter tout décalage entre les raies optiques excitatrices et la raie d'absorption (même isotope dans la lampe et dans la cellule de résonance ; pression de gaz étranger très faible dans la lampe).

Considérons par exemple le cas où l'atome étudié possède deux niveaux hyperfins 1 et 2 dans l'état fondamental (fig. 29) et soit e l'état excité (nous supposons pour simplifier que la structure hyperfine dans l'état excité est petite devant la largeur Doppler).

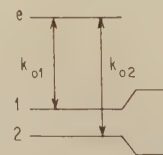


FIG. 29.

La lampe qui contient le même élément que la cellule de résonance émet les deux composantes hyperfines k_{01} et k_{02} . Les photons k_{01} font effectuer aux atomes qui se trouvent dans le niveau 1 des transitions réelles vers le niveau e ; par contre, elles font effectuer aux atomes qui se trouvent dans le niveau 2 des transitions virtuelles vers le niveau e à condition toutefois que la séparation hyperfine entre 1 et 2 ne soit pas petite devant la largeur Doppler. Comme $k_{01} - k_{02} < 0$, la valeur correspondante de $\Delta E'$ est négative et le déplacement du niveau 2 se fait vers le bas (partie droite de la

figure 29). On verrait de même que les photons k_{02} font effectuer aux atomes qui se trouvent dans le niveau 1 des transitions virtuelles vers le niveau e . Comme $k_{02} - k_{01} > 0$, le déplacement correspondant du niveau 1 se fait vers le haut. Nous voyons ainsi que l'effet global des transitions virtuelles est d'augmenter la séparation énergétique entre les deux niveaux *hyperfins* 1 et 2.

Le cas où la structure hyperfine dans l'état excité n'est pas négligeable devant la largeur Doppler se traite évidemment de la même façon. Il faut, de façon générale, tenir compte de l'effet des transitions virtuelles induites par *chacune* des composantes hyperfines émises par la source et qui sont relatives à l'ensemble des autres composantes hyperfines. Ces effets sont particulièrement importants lorsque les structures hyperfines dans l'état excité ou dans l'état fondamental sont de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler et il n'y a alors aucun moyen de les éviter.

Dans le cas de ^{199}Hg , la structure hyperfine, qui existe uniquement dans l'état excité est très grande (une vingtaine de largeurs Doppler). On peut donc négliger « l'excitation virtuelle » de la composante 1/2 par la composante 3/2 ou inversement. Par contre, il n'en est pas de même dans plusieurs autres cas, comme par exemple celui des atomes alcalins.

b) Cas du déplacement ε'' . — Le déplacement ε'' est beaucoup plus facile à éviter. Nous avons vu en effet qu'il dépendait du champ magnétique H_0 et qu'il était maximum lorsque la largeur naturelle Γ du niveau excité était égale à $\omega_e - \omega_f$. Pour que ε'' soit le plus petit possible, il faut donc se placer, soit en champ très faible ($\Gamma \gg \omega_e - \omega_f$), soit en champ fort ($\omega_e - \omega_f \gg \Gamma$).

En tout état de cause, si l'on ne peut éliminer complètement ε' et ε'' , la méthode la plus sûre pour atteindre la vraie valeur de la fréquence de résonance magnétique (en l'absence de toute perturbation d'origine optique) consiste à mesurer la position de cette résonance pour plusieurs valeurs de l'intensité lumineuse du faisceau de pompage et à extrapoler à intensité lumineuse nulle.

2° Ordre de grandeur des erreurs que l'on peut commettre. — Afin d'illustrer les considérations précédentes, nous avons fait l'expérience suivante :

Nous supposons que l'on veut effectuer par la méthode du pompage optique une mesure de la séparation énergétique des deux sous-niveaux Zeeman $\pm 1/2$ de l'état fondamental de ^{199}Hg . Nous ne prenons aucune des précautions énoncées plus haut : la lampe du faisceau de pompage n'est pas forcément une lampe à ^{199}Hg (nous ne cherchons pas à minimiser ε') ; la valeur du champ magnétique H_0 est telle que $\Gamma \sim \omega_e - \omega_f$ (nous ne cherchons pas à minimiser ε''). On peut, en principe, n'utiliser que le seul faisceau de pompage, comme dans les expériences de Cagnac (En fait, nous avons utilisé

un deuxième faisceau à angle droit, qui joue uniquement un rôle de détection et dont l'intensité lumineuse peut, par suite, être très faible). Le dispositif expérimental est celui de la figure 22, où l'on a supprimé l'électroaimant et le filtre F (La suppression du filtre F permet de gagner beaucoup sur l'intensité lumineuse du faisceau 1).

La lampe L_1 du faisceau de pompage est successivement une lampe à ^{201}Hg , une lampe à ^{199}Hg et une lampe à ^{204}Hg . Dans chacun de ces trois cas, nous mesurons la position de la raie de résonance magnétique, en polarisation σ^+ et en polarisation σ^- , pour diverses valeurs de l'intensité lumineuse I du faisceau de pompage (fig. 30).

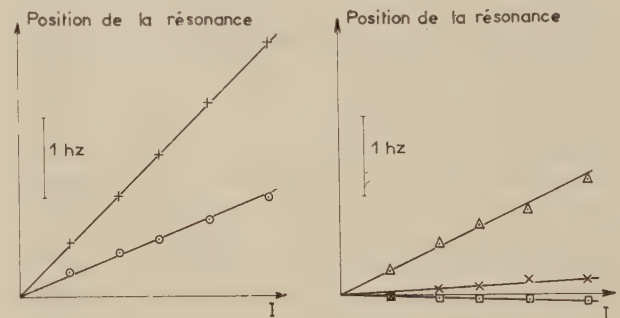


FIG. 30 a

FIG. 30 b

- a) $\begin{cases} + & \text{Lampe } ^{201}\text{Hg} \text{ polarisation } \sigma^- \\ \circ & \text{Lampe } ^{201}\text{Hg} \text{ polarisation } \sigma^+ \end{cases}$
- b) $\begin{cases} \triangle & \text{Lampe } ^{199}\text{Hg} \text{ polarisation } \sigma^+ \text{ ou } \sigma^- \\ \times & \text{Lampe } ^{204}\text{Hg} \text{ polarisation } \sigma^- \\ \square & \text{Lampe } ^{204}\text{Hg} \text{ polarisation } \sigma^+ \end{cases}$

Nous voyons sur la figure 30 que la position de la raie de résonance dépend de façon très sensible de l'intensité lumineuse. Nous avons vérifié que la valeur extrapolée en intensité lumineuse nulle était la même pour chacun des trois cas étudiés. L'écart avec la position extrapolée peut atteindre 3 Hz (lampe à ^{201}Hg en polarisation σ^-). Comme nous opérons à une fréquence de 773 Hz, nous voyons que l'on peut commettre ainsi des erreurs relatives de l'ordre de $4 \cdot 10^{-3}$ si l'on n'effectue pas l'extrapolation à intensité lumineuse nulle (La structure Zeeman de l'état fondamental étant due au seul spin nucléaire, ω_f est très petit, ce qui explique que l'erreur relative soit si importante).

Les résultats représentés sur la figure 30 s'interprètent aisément si l'on se souvient que ε' change de signe lorsqu'on passe de la polarisation σ^+ à la polarisation σ^- alors que ε'' ne change pas. La différence entre les positions de la résonance en σ^+ et en σ^- est donc égale à $2\varepsilon'$. Par contre, la demi-somme de ces deux positions dépend uniquement du terme ε'' .

Lorsque la lampe L_1 est une lampe à ^{201}Hg , $\Delta E'$ a une

valeur très importante (fig. 30, a) : nous constatons effectivement que la position de la résonance est très différente en σ^+ et en σ^- . La composante $1/2$ de ^{201}Hg , qui est très proche de la composante $3/2$ de ^{199}Hg (voir fig. 11) induit également des transitions réelles, ce qui donne naissance à un déplacement du type ε'' (l'aile de la composante $5/2$ de ^{201}Hg induit également des transitions réelles mais $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$ est nul pour la composante $1/2$ de ^{199}Hg en polarisation σ^+ ou σ^-) : nous constatons effectivement que les deux droites d'extrapolation ne sont pas symétriques par rapport à l'axe des abscisses (la demi-somme des deux positions de la raie de résonance dépend de l'intensité lumineuse, ce qui démontre que ε'' est différent de zéro).

Lorsque la lampe L_1 est une lampe à ^{199}Hg , $\Delta E'$ est nul puisque les fréquences optiques excitatrices coïncident avec les fréquences d'absorption et que la distance des composantes hyperfines est grande par rapport à la largeur Doppler (fig. 30, b). Nous constatons effectivement que la position de la résonance est la même, aux erreurs d'expérience près, en σ^+ et en σ^- . Par contre, ε'' est différent de zéro et la position de la résonance (en σ^+ ou en σ^-) continue de dépendre de l'intensité lumineuse : nous opérons à une valeur du champ où le déplacement dû aux transitions réelles existe.

Enfin, lorsque la lampe L_1 est une lampe à ^{204}Hg (fig. 30, b) $\Delta E'$ est petit puisque $k_1 - k_{01}$ est de l'ordre de $1/7$ de largeur Doppler. La précision des mesures est cependant suffisante pour détecter un tel effet puisque nous constatons une légère différence entre les positions de la résonance en σ^+ et en σ^- . Nous constatons également que la demi-somme des deux positions de la résonance dépend très peu de l'intensité lumineuse, ce qui est normal puisque $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$ est nul pour la composante $1/2$ de ^{199}Hg en polarisation σ^+ ou σ^- (cf. appendice).

3° Remarques concernant les mesures de Cagnac.

— Nous pouvons maintenant, à la lumière de ces considérations, analyser les expériences de Cagnac (14) et essayer de comprendre pourquoi il n'observa jamais d'effet de l'intensité lumineuse sur la position des raies de résonance magnétique soit de ^{199}Hg , soit de ^{201}Hg .

Cagnac opérait sur le ^{199}Hg à une fréquence de l'ordre de 160 kHz, c'est-à-dire dans des conditions où $\omega_e - \omega_f$ est près de 200 fois supérieur à Γ , ce qui excluait toute possibilité d'un déplacement ε'' . Il utilisait d'autre part une lampe à ^{204}Hg . Nous voyons sur la figure 30 b que nous observons dans ce cas des déplacements qui sont au maximum de l'ordre de 0,2 Hz. Or, grâce aux nouveaux polariseurs dans l'ultra-violet que nous avons décrit plus haut (cf. § IV, 3), nous disposons d'intensités lumineuses près de 10 fois supérieures aux siennes. La précision des pointés étant de l'ordre de 0,05 Hz, il est par suite tout à fait naturel que Cagnac n'ait observé aucun déplacement d'origine optique.

On peut se demander par contre si de tels effets n'auraient pas dû être visibles dans le cas des expériences d'alignement (14) de ^{201}Hg (dont le spin I est, rappelons-le, égal à $3/2$). En effet, dans ces expériences, il n'est pas nécessaire d'utiliser de polariseurs et les flux lumineux utilisés par Cagnac étaient au moins égaux, sinon supérieurs à ceux qui correspondent à la figure 30. D'autre part, il excitait soit la composante $5/2$ de ^{201}Hg avec une lampe à ^{204}Hg , soit la composante $3/2$ de ^{201}Hg avec une lampe à ^{198}Hg ; dans ces deux cas, la distance entre la raie excitatrice et la raie d'absorption est de l'ordre de la largeur Doppler. Il semble donc que l'on soit ainsi dans une situation extrêmement favorable à l'apparition d'effets du type ε' .

En fait, par suite des symétries de l'alignement, on a toujours $A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2}$ et $A_{3/2-3/2} = A_{-3/2-3/2}$. Ceci entraîne (fig. 31) que la distance entre les deux sous-niveaux $+1/2$ et $-1/2$ n'est pas modifiée; d'autre part, les variations des deux séparations $+1/2$, $+3/2$ et $-1/2$, $-3/2$ sont égales et de signe opposé.

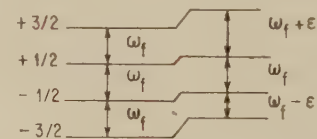


FIG. 31.

On voit ainsi que la raie de résonance magnétique est décomposée en trois raies distinctes, $\omega_f - \varepsilon$, ω_f , et $\omega_f + \varepsilon$. La position du centre de gravité de ces trois raies ne dépend pas de l'intensité lumineuse. Comme les phénomènes de relaxation thermique sont près de 20 fois plus efficaces (14) dans le cas du ^{201}Hg que dans celui du ^{199}Hg (relaxation de type quadrupolaire), la largeur des raies de résonance magnétique ne permet pas de résoudre cette structure et la position de la raie globale ne dépend donc pas de l'intensité lumineuse.

En résumé, nous pensons que les résultats des mesures de Cagnac ne sont entachés d'aucune erreur provenant de déplacements d'origine optique.

Signalons enfin que des déplacements d'origine optique (« light-shifts ») de raies de résonance magnétique ont été observés également par d'autres expérimentateurs. C'est ainsi qu'Arditi et Carver (34) signalent l'existence de light-shifts sur la transition hyperfine $0 \leftrightarrow 0$ de l'état fondamental des atomes alcalins (C'est cette transition qui est observée dans les horloges atomiques utilisant le pompage optique). Il en est de même de Shearer (39) dans le cas des résonances magnétiques de l'état 2^3S_1 de l'hélium. Il semble que dans les deux cas les phénomènes observés peuvent s'interpréter dans le cadre de la théorie présentée ici.

CHAPITRE VI

ÉTUDE DE L'ÉLARGISSEMENT DES RAIES DE RÉSONANCE MAGNÉTIQUE

1° Buts de l'expérience (17)

Il s'agit de prouver que la lumière de résonance optique utilisée dans toute expérience de pompage optique est une cause de relaxation transversale : comme nous l'avons vu, elle détruit le module de la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$ avec une constante de temps T_2 telle que :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2'} - \frac{1}{T_2''} = \frac{A_{1/2-1/2} + A_{-1/2-1/2}}{2T_p} - \frac{B_{1/2-1/2}}{T_p} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2} \quad \left. \vphantom{\frac{1}{T_2}} \right\} \text{(VI, 1)}$$

Nous avons indiqué (cf. § III, D, 5) que $\frac{1}{T_2'}$ représente la disparition de cohérence hertzienne de l'état fondamental lors du passage dans l'état excité par absorption de photons ; $\frac{1}{T_2''}$ représente la restitution de cohérence hertzienne (partielle parce que $T_2'' > T_2'$) lors de la retombée dans l'état fondamental. C'est plus particulièrement ce second terme dont nous avons voulu vérifier l'existence. Il varie avec le champ magnétique à cause du facteur $\Gamma^2/[\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2]$ (dont l'interprétation physique a été étudiée en détail dans la partie théorique). Rappelons qu'une telle variation avec le champ n'existe pas pour les temps de relaxation longitudinaux associés à l'excitation optique.

A la relaxation transversale *optique*, décrite par le temps T_2 de la formule (VI, 1), se superpose, sans aucune corrélation la relaxation *thermique* habituelle, décrite par le temps de relaxation transversal Θ_2 , de sorte que l'amortissement global de la cohérence hertzienne se fait avec une constante de temps τ_2 telle que :

$$\frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{\Theta_2}. \quad \text{(VI, 2)}$$

C'est évidemment la quantité $1/\tau_2$ que l'on mesure expérimentalement. $1/T_2$ étant proportionnel à l'intensité lumineuse I , la mesure de $1/\tau_2$ pour différentes valeurs de I permet d'obtenir par extrapolation la valeur de $1/\Theta_2$ et de déduire ensuite de (VI, 2), la valeur de $1/T_2$.

2° Réalisation de l'expérience

a) Le dispositif expérimental. — Il est en tous points identique à celui que nous avons déjà décrit

dans le chapitre (V, B) à propos de l'expérience relative au déplacement ε'' dû aux transitions réelles. Le schéma de ce dispositif est donc représenté sur la figure 15.

C'est la valeur du temps T_2 associé au faisceau 2 que nous désirons mesurer dans l'expérience décrite ci-dessous.

b) Méthode « statique » et méthode « dynamique ». — Nous avons déjà fait remarquer lors de la discussion des résultats de l'expérience décrite dans le § V, B que le faisceau 2 élargissait les raies de résonance magnétique (cf. fig. 16). On peut songer effectivement pour mesurer $1/\tau_2$, à faire une étude précise de la largeur des raies de résonance magnétique. En fait, la largeur d'une telle raie dépend également de l'amplitude H_1 du champ de radiofréquence. Pour mesurer la largeur intrinsèque, $1/\pi\tau_2$, il faut donc tracer un réseau entier de courbes de résonance correspondant à diverses valeurs de cette amplitude H_1 , puis extrapoler les valeurs des largeurs observées à H_1 nul. Une telle méthode porte le nom de *méthode statique*. Elle est très longue puisque chaque mesure de $1/\tau_2$ nécessite le tracé de tout un réseau de courbes.

Aussi il nous a semblé beaucoup plus intéressant d'utiliser une autre méthode, la *méthode dynamique*, que nous décrivons maintenant.

— Nous avons vu dans le § V, B que le courant photo-électrique de C comportait une partie modulée à la fréquence $\omega/2\pi$ du champ de radiofréquence. On peut amplifier sélectivement cette modulation et obtenir ainsi un *signal directement proportionnel au module de la cohérence hertzienne* $\sigma_{1/2-1/2}$.

Supposons qu'à un certain instant, nous coupions rapidement et simultanément la radiofréquence et le faisceau de pompage 1 (qui n'interviennent donc plus par la suite et dont le rôle unique a été de préparer le système atomique dans un état initial comportant de la cohérence hertzienne). La cohérence hertzienne s'amortit alors sous l'effet de la relaxation thermique et de la relaxation optique associée au faisceau 2, c'est-à-dire avec une constante de temps τ_2 . Il suffit donc pour mesurer τ_2 , d'envoyer le signal de modulation fourni par C sur un oscillographe cathodique et d'en observer l'amortissement une fois que l'on a coupé simultanément la radiofréquence et le faisceau 1 (le faisceau 1 est masqué brusquement au moyen d'un obturateur photographique. La prise de flash de cet obturateur est utilisée pour court-circuiter au même instant la sortie de l'émetteur de radiofréquence).

Cette deuxième méthode est considérablement plus simple et plus rapide que la précédente.

3^o Résultats de l'expérience

— La photo *a* de la figure 43 du chapitre VIII montre un exemple des phénomènes observés sur l'écran de l'oscillographe cathodique.

Nous avons vérifié que la décroissance du signal de modulation était bien exponentielle.

— La figure 32 représente la variation de $1/\tau_2$ avec

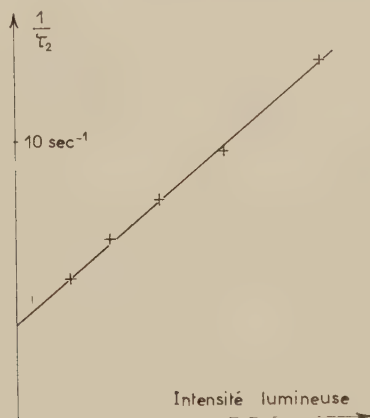


FIG. 32.

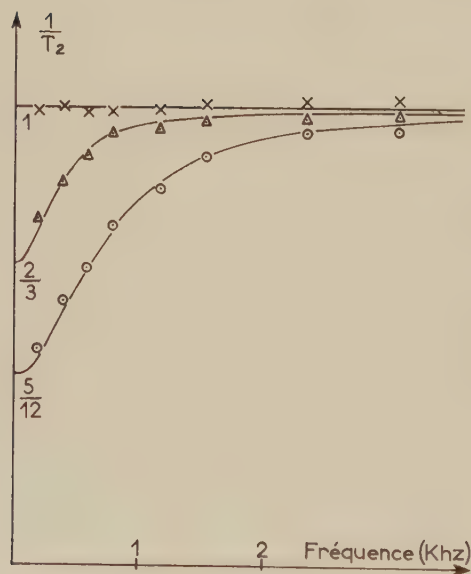


FIG. 33.

Composante $\frac{1}{2}$: $\times$ Polarisation σ .
 $\triangle$ Polarisation π .
 Composante $\frac{3}{2}$: $\circ$ Lumière naturelle.

l'intensité lumineuse I du faisceau 2. Nous vérifions que cette variation est bien linéaire. La valeur extrapolée de $1/\tau_2$ à intensité lumineuse nulle, est l'inverse, $1/\Theta_2$, du temps de relaxation transversal thermique. On en déduit par soustraction la valeur de $1/T_2$ (formule VI, 2).

— Nous avons étudié la variation de $1/T_2$ avec le champ magnétique (ω_f) pour chacune des deux composantes hyperfines de ^{199}Hg et pour diverses polarisations. Nous avons dessiné sur les figures 33 et 34 les courbes calculées à partir de la formule (VI, 1); les points sont les points expérimentaux. L'accord avec la théorie est très bon. Les nombres inscrits sur l'axe des ordonnées sont les rapports théoriques entre les valeurs de $1/T_2$ en champ fort et en champ nul. Ces rapports dépendent uniquement des valeurs de $A_{1/2-1/2}$, $A_{-1/2-1/2}$, $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$, donc de la polarisation du faisceau 2 et sont bien vérifiés expérimentalement. Nous vérifions en particulier que $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$ est nul pour la composante $1/2$ de ^{199}Hg en polarisation σ puisque, dans ce cas, $1/T_2$ ne varie pas avec le champ (fig. 33). Nous voyons également que l'effet de conservation partielle de la cohérence hertzienne au cours du cycle de pompage optique n'est pas un effet petit : pour la composante $3/2$ de ^{199}Hg en polarisation π , nous voyons en effet sur la figure 34 que T_2 s'allonge par un facteur 3 lorsqu'on passe des champs forts ($\Gamma \ll \omega_e - \omega_f$) aux champs faibles ($\Gamma \gg \omega_e - \omega_f$).

Remarquons enfin que la largeur des courbes de

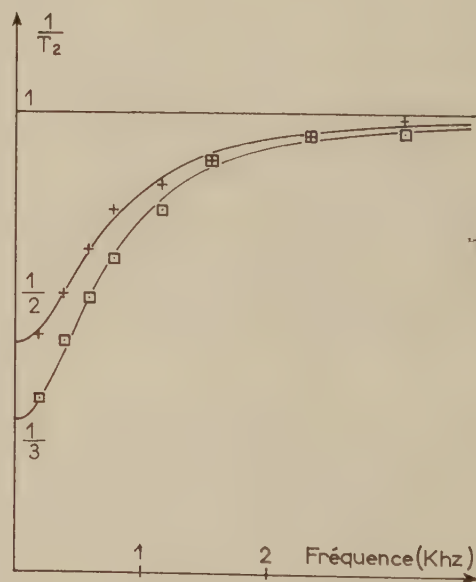


FIG. 34.

Composante $\frac{3}{2}$: $+$ Polarisation σ .
 $\square$ Polarisation π .

Lorentz (renversées) des figures 33 et 34 (qui correspond à $\Gamma = \omega_e - \omega_f$, c'est-à-dire à $\Gamma = \omega_e$ puisque $\omega_e \gg \omega_f$) est deux fois plus grande pour la composante $3/2$ que pour la composante $1/2$. Ceci correspond au facteur 2 qui existe entre les facteurs de Landé des deux niveaux hyperfins de l'état excité de ^{199}Hg (Nous avons déjà rencontré un effet analogue lors de l'étude

de la variation de ε'' avec le champ magnétique, cf. fig. 18).

En conclusion, nous voyons que l'expérience permet de vérifier *quantitativement* toutes les prévisions théoriques relatives à l'amortissement d'origine optique de la cohérence hertzienne.

CHAPITRE VII

MODULATION DE LA LUMIÈRE DE FLUORESCENCE

1° Buts de l'expérience

— Il s'agit de prouver que le moment angulaire global, aussi bien longitudinal que transversal, de l'état excité exécute un mouvement forcé à la fréquence de Larmor $\frac{\omega_f + \varepsilon}{2\pi}$ de l'état fondamental lorsqu'il existe un moment angulaire transversal global dans l'état fondamental ($\sigma_{1/2-1/2} \neq 0$) et que les atomes sont irradiés par un faisceau lumineux (En présence d'un champ de radiofréquence qui agit sur l'état fondamental, le mouvement forcé se fait, non pas à la fréquence $\frac{\omega_f + \varepsilon}{2\pi}$ mais à la fréquence $\omega/2\pi$ du champ de radiofréquence). Notre but est de montrer également que l'amplitude et la phase de ce mouvement forcé dépendent du champ magnétique.

— Nous avons vu dans la partie théorique (cf. III, C) que l'existence d'un tel mouvement forcé dans l'état excité doit se traduire expérimentalement par l'apparition d'une modulation de la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$, ce qui permet ainsi de le détecter. Nous avons vu qu'il est possible d'observer séparément le mouvement forcé du moment angulaire longitudinal et celui du moment angulaire transversal de l'état excité. Rappelons qu'il faut pour cela se placer dans les conditions suivantes :

Cas α (mouvement du moment angulaire longitudinal).

— La polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau lumineux exciteur doit être « cohérente » ; celle, $\vec{e}_\lambda$, de la lumière de fluorescence que l'on observe doit être non cohérente. On déduit alors facilement de (III, B, 1, c) et (III, C, 4) que la modulation de la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ se met sous la forme :

$$\frac{1}{T_p} f_\alpha(\vec{e}_{\lambda_0}, \vec{e}_\lambda) \frac{\Gamma}{\Gamma - i\omega_f} \sigma_{1/2-1/2}(t) + \text{c. c.} \quad (\text{VII, 1})$$

$f_\alpha(\vec{e}_{\lambda_0}, \vec{e}_\lambda)$ étant une constante qui ne dépend que de $\vec{e}_{\lambda_0}$ et $\vec{e}_\lambda$.

Cas β (mouvement du moment angulaire transversal). — Contrairement à ce qui est fait dans le cas α , la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ n'est pas cohérente, la polarisation $\vec{e}_\lambda$, cohérente. La modulation de la lumière de fluorescence se met alors sous la forme :

$$\frac{1}{T_p} f_\beta(\vec{e}_{\lambda_0}, \vec{e}_\lambda) \frac{\Gamma}{\Gamma + i(\omega_e - \omega_f)} \sigma_{1/2-1/2}(t) + \text{c. c.} \quad (\text{VII, 2})$$

$f_\beta(\vec{e}_{\lambda_0}, \vec{e}_\lambda)$ étant, là encore, une constante qui ne dépend que de $\vec{e}_{\lambda_0}$ et $\vec{e}_\lambda$.

— Il est clair que l'on peut repérer l'amplitude et la phase de la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ par rapport à celles du champ de radiofréquence utilisé pour introduire la cohérence $\sigma_{1/2-1/2}(t)$ dans le système atomique. Mais les variations de l'amplitude et de la phase de $\sigma_{1/2-1/2}(t)$ sont elles-mêmes assez complexes (elles dépendent de nombreux facteurs et entre autres de l'écart à la résonance. Nous étudierons en détail ces variations dans le chapitre VIII). Nous nous sommes bornés ici à étudier les variations de l'amplitude et de la phase de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ par rapport à $\sigma_{1/2-1/2}$, afin de mettre expérimentalement en évidence les termes dépendant du champ $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\omega_f}$ (ou $\frac{\Gamma}{\Gamma + i(\omega_e - \omega_f)}$) dont nous avons donné l'interprétation physique dans la partie théorique (cf. § III, C, 2).

Dans le cas des isotopes impairs du mercure, $\omega_e \gg \omega_f$. L'effet du champ magnétique sur la phase et l'amplitude de la modulation de la lumière de fluorescence doit donc être très différent pour les cas (α) et (β).

2° Réalisation de l'expérience

a) Le dispositif expérimental. — Il est identique à celui que nous avons déjà décrit au paragraphe V, B (voir fig. 15).

Un photomultiplicateur, PM (non représenté sur la figure 15) est placé dans la direction Oy, perpendicu-

laire à Oz et Oz. On place avant le photomultiplicateur un polaroïd ou un analyseur circulaire, de façon à observer la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ émise avec un état de polarisation donné, $\vec{e}_\lambda$.

Comme précédemment, le faisceau 1 pompe optiquement la vapeur atomique. Un champ de radiofréquence permet d'effectuer la résonance magnétique et d'introduire la cohérence $\sigma_{1/2-1/2}$ dans le système atomique. Le faisceau 2 a pour rôle de coupler le moment angulaire (longitudinal ou transversal) de l'état excité au moment angulaire transversal de l'état fondamental ($\sigma_{1/2-1/2}$).

Remarquons que le faisceau 1 ne peut effectuer un tel couplage. En effet, la polarisation de ce faisceau, σ^+ , n'étant pas cohérente, les éléments diagonaux σ_{mm} de la matrice densité dans l'état excité ne sont pas couplés à $\sigma_{1/2-1/2}$ (cf. § III, A, 6). D'autre part, ce faisceau excite sélectivement la composante $1/2$ de ^{199}Hg (L_1 est une lampe à ^{204}Hg). On vérifie alors aisément (fig. 35) que la cohérence hertzienne dans l'état excité $\sigma_{mm'}$ n'est pas couplée à $\sigma_{1/2-1/2}$ (Par suite de la polarisation σ^+ , le seul élément de matrice angulaire différent de zéro est celui qui relie $\mu = -1/2$ à $m = +1/2$).

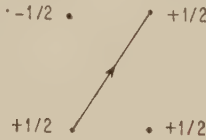


FIG. 35.

La modulation de la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ qui résulte du couplage entre l'état excité (σ_{mm} , $\sigma_{mm'}$) et $\sigma_{1/2-1/2}$ ne peut donc provenir que du faisceau 2.

a) Pour réaliser le cas α , on donne au faisceau 2 la polarisation circulaire droite par rapport à $\vec{Ox}$ ($\vec{e}_{\lambda_0}$ cohérent). On ne dispose ni polaroïd ni analyseur devant le photomultiplicateur (On peut montrer en effet dans ce cas que la lumière de fluorescence est fonction uniquement des éléments diagonaux σ_{mm} de la matrice densité dans l'état excité : tout se passe donc comme si on détectait la lumière de fluorescence $L_F(\vec{e}_\lambda)$ émise avec une polarisation $\vec{e}_\lambda$ non cohérente).

b) Pour réaliser le cas β , on donne au faisceau 2 la polarisation π ($\vec{e}_{\lambda_0}$ non cohérent) ; on place devant PM un analyseur circulaire ($\vec{e}_\lambda$ cohérent).

Dans les deux cas, nous avons constaté effectivement l'apparition d'une modulation de la lumière de fluorescence à la fréquence $\omega/2\pi$ lorsqu'on effectue la résonance magnétique dans l'état fondamental ($\sigma_{1/2-1/2} \neq 0$). Cette modulation disparaît lorsqu'on masque le fais-

ceau 2, ce qui prouve bien que le faisceau 1 ne couple pas l'état excité à la cohérence hertzienne $\sigma_{1/2-1/2}$ de l'état fondamental.

Remarque. — Nous avons remarqué que, lorsque la direction du faisceau 1 ne coïncide pas exactement avec la direction Oz du champ magnétique H_0 , il apparaissait une légère modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ associée au faisceau 1. Ceci est dû au fait que la polarisation de ce faisceau est alors légèrement « cohérente » puisqu'elle n'est pas rigoureusement σ^+ par rapport à H_0 . Le faisceau 1 couple alors σ_{mm} à $\sigma_{1/2-1/2}$ et il en résulte une modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$. Nous nous sommes servis de ce test très sensible pour aligner exactement le faisceau 1 suivant H_0 .

b) Repérage de l'amplitude et de la phase de la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$. — Comme nous l'avons dit, pour vérifier expérimentalement l'existence des effets décrits par les termes $\frac{\Gamma}{\Gamma - i\omega_f}$ et $\frac{\Gamma}{\Gamma + i(\omega_e - \omega_f)}$ qui figurent dans les expressions (VII, 1) et (VII, 2), nous devons comparer entre elles la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$ et celle de $\sigma_{1/2-1/2}$ (rapport des amplitudes, déphasage).

Or, nous avons déjà indiqué que le courant photoélectrique de C (fig. 15) comportait une modulation directement proportionnelle à $\sigma_{1/2-1/2}$ (Dans le cas β , où la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau 2 n'est pas cohérente, il faut placer un analyseur circulaire A entre la cellule de résonance O et C). On déduit aisément de (III, A, 10) que la modulation détectée par C se met sous la forme :

$$\frac{I}{I_p} g \sigma_{1/2-1/2}(t) + \text{c. c.} \quad (\text{VII, 3})$$

g étant une constante (qui dépend de $\vec{e}_{\lambda_0}$ dans le cas α , de la polarisation détectée par l'analyseur circulaire A dans le cas β) mais qui ne dépend pas du champ magnétique.

Le principe de l'expérience consiste donc à comparer entre elles les modulations fournies par la cellule photoélectrique C et le photomultiplicateur PM.

— Supposons qu'on effectue la résonance magnétique dans l'état fondamental et désignons par M_C et M_P les modulations des signaux fournis par C et PM. On déduit aisément de (VII, 1), (VII, 2), (VII, 3) que le rapport a_P/a_C des amplitudes a_P et a_C de M_P et M_C se met sous la forme :

$$\begin{aligned} \text{Cas } \alpha : \quad \frac{a_P}{a_C} &= \lambda_\alpha \frac{\Gamma}{\sqrt{\Gamma^2 + \omega_f^2}} \\ \text{Cas } \beta : \quad \frac{a_P}{a_C} &= \lambda_\beta \frac{\Gamma}{\sqrt{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2}} \end{aligned} \quad (\text{VII, 4})$$

λ_α et λ_β étant des coefficients sans dimensions qui ne dépendent pas du champ magnétique (ils dépendent uniquement de e_{λ_0} , e_λ et évidemment des sensibilités de C et PM).

En ce qui concerne le déphasage $\varphi_P - \varphi_C$ entre M_P et M_C , la théorie prévoit de même que :

$$\begin{aligned} \text{Cas } \alpha : \quad \varphi_P - \varphi_C &= \varphi_\alpha + \text{Arc tg } \frac{\omega_f}{\Gamma} \\ \text{Cas } \beta : \quad \varphi_P - \varphi_C &= \varphi_\beta + \text{Arc tg } \frac{-(\omega_e - \omega_f)}{\Gamma} \end{aligned} \quad (\text{VII}, 5)$$

φ_α et φ_β sont là encore des constantes qui ne dépendent pas du champ.

c) **Méthode de mesure de a_P/a_C et $\varphi_P - \varphi_C$.** — Il s'agit de mesurer a_P/a_C et $\varphi_P - \varphi_C$ pour plusieurs valeurs de la fréquence de résonance magnétique de façon à vérifier (VII, 4) et (VII, 5).

L'idée la plus simple consiste alors à envoyer les modulations M_P et M_C sur les deux voies A et B d'un oscillographe cathodique *bicourbe*. En fait, nous avons procédé d'une façon légèrement différente parce que les mesures ne sont possibles que si M_P et M_C sont amplifiées par des amplificateurs sélectifs à la fréquence $\omega/2\pi$ (Il faut également pouvoir changer la fréquence d'accord de façon à étudier les variations de a_P/a_C et $\varphi_P - \varphi_C$ avec la fréquence de résonance magnétique). La méthode précédente, pour être valable, requiert que M_P et M_C soient amplifiées par deux amplificateurs rigoureusement identiques. Afin d'éviter toute erreur due à l'électronique, nous avons préféré utiliser le même amplificateur sélectif pour amplifier M_P et M_C . C'est la sortie de cet amplificateur que nous envoyons sur l'une des voies, A, de l'oscillographe cathodique ; à l'entrée de cet amplificateur, nous envoyons dans une première étape le signal de sortie de C ; dans une deuxième étape, le signal de sortie de PM, toutes les conditions expérimentales demeurant identiques. Sur l'autre voie, B, de l'oscillographe, nous envoyons en permanence un signal prélevé sur la sortie de l'émetteur de radiofréquence et qui est, lui aussi, à la fréquence $\omega/2\pi$; ce signal nous sert de référence pour mesurer φ_P et φ_C . On obtient ainsi très facilement et très rapidement a_P/a_C et $\varphi_P - \varphi_C$.

d) **Modulation parasite due à la diffusion multiple.** — Nous nous sommes rendus compte au cours des mesures qu'une cause importante de modulation parasite était constituée par la diffusion multiple.

En effet, la lumière de fluorescence émise par un atome situé à l'intérieur de la cellule de résonance O traverse une certaine épaisseur de vapeur avant de quitter la cellule et d'être détectée par le photomultiplicateur. Comme cette couche de vapeur subit également la résonance magnétique, il s'ensuit que sa transparence varie sinusoidalement en fonction du temps

autour d'une certaine valeur moyenne. Ce phénomène introduit donc une modulation supplémentaire qui s'ajoute à la modulation *intrinsèque* de la lumière de fluorescence.

Pour vérifier cette interprétation, nous avons fait varier la température du queusot de la cellule de résonance ; nous avons constaté que la modulation parasite augmentait très rapidement avec la pression de vapeur. Les expériences décrites dans ce chapitre ont été faites sur une cellule cubique de 2 cm d'arête dont le queusot était thermostaté à une température de -30°C , c'est-à-dire dans des conditions où la modulation parasite due à la diffusion multiple est négligeable devant la modulation intrinsèque.

3° Résultats de l'expérience

Dans le cas des isotopes impairs du mercure, $\omega_e \gg \omega_f$. La condition $\omega_f \sim \Gamma$ correspond à un champ directeur H_0 de l'ordre de 1 800 gauss. Comme le champ maximum donné par notre aimant est de l'ordre de 350 gauss, il n'est pas possible d'observer la variation avec le champ de a_P/a_C et $\varphi_P - \varphi_C$ dans le cas α . Par contre, dans le cas β , les effets de variation avec le champ doivent être aisément observables puisque la condition $\omega_e \sim \Gamma$ correspond à un champ de l'ordre du gauss.

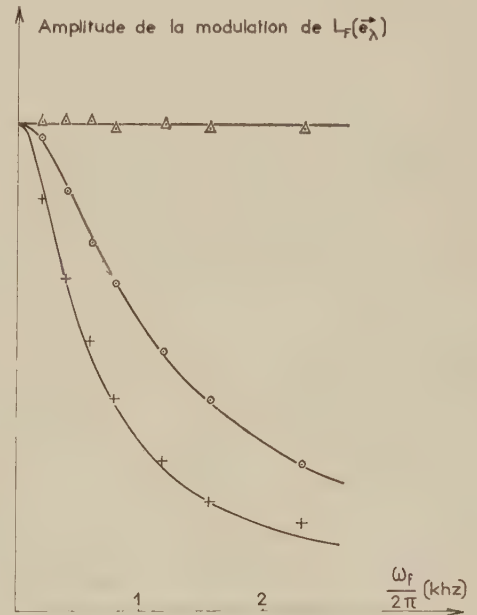


FIG. 36.

Composante $\frac{1}{2} \left\{ \begin{array}{l} \Delta \rightarrow e_{\lambda_0} \text{ cohérent, } e_\lambda \text{ non cohérent.} \\ + \rightarrow e_{\lambda_0} \text{ non cohérent, } e_\lambda \text{ cohérent.} \end{array} \right.$

Composante $\frac{3}{2} : \odot \rightarrow e_{\lambda_0} \text{ non cohérent, } e_\lambda \text{ cohérent.}$

La figure 36 représente la variation avec le champ (ω_f) de l'amplitude de la modulation de la lumière de fluorescence, plus exactement la variation avec ω_f du rapport a_p/a_c . Les points expérimentaux représentés par des triangles correspondent au cas α et à une excitation sélective de la composante 1/2 de ^{199}Hg par le faisceau 2. Les points expérimentaux correspondant au cas β sont représentés par des cercles (composante 3/2 excitée sélectivement) et des croix (composante 1/2 excitée sélectivement).

Nous constatons effectivement que a_p/a_c varie avec le champ dans le cas β , alors qu'il reste constant dans le cas α . Pour comparer quantitativement les résultats expérimentaux aux prévisions théoriques, il faut déterminer les paramètres λ_α et λ_β des formules (VII, 4). Il suffit alors pour cela d'utiliser un seul des points expérimentaux de chaque courbe. Sur la figure 36, nous avons

dessiné la courbe $\frac{\Gamma}{\sqrt{\Gamma^2 + \omega_f^2}}$ (qui se réduit à une droite dans le domaine exploré pour ω_f), les deux courbes $\frac{\Gamma}{\sqrt{\Gamma^2 + (\omega_e - \omega_f)^2}}$ correspondant aux deux niveaux hyperfins de l'état excité de ^{199}Hg (notons que ce ne sont pas des courbes de Lorentz) puis nous avons porté les points expérimentaux après avoir multiplié tous ceux qui sont relatifs à une même courbe par une même constante, $1/\lambda_\alpha$ ou $1/\lambda_\beta$, que l'on détermine à partir d'un seul d'entre eux. Nous voyons que l'accord entre la théorie et l'expérience est très bon.

La figure 37 représente la variation avec le champ (ω_f) de la phase de la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$, plus exactement la variation avec ω_f de $\varphi_p - \varphi_c$.

Nous constatons que le déphasage $\varphi_p - \varphi_c$ varie avec ω_f dans le cas β alors qu'il reste constant dans le cas α . Pour vérifier quantitativement les prévisions théoriques (VII, 5), nous avons procédé de la même façon que plus haut : les courbes de la figure 37 sont dessinées à partir des formules théoriques $\text{Arc tg } \frac{\omega_f}{\Gamma}$ et $\text{Arc tg } \frac{-(\omega_e - \omega_f)}{\Gamma}$. Nous portons ensuite les points expérimentaux relatifs à chaque courbe en leur ajoutant tous une même constante ($-\varphi_\alpha$, $-\varphi_\beta$) déterminée

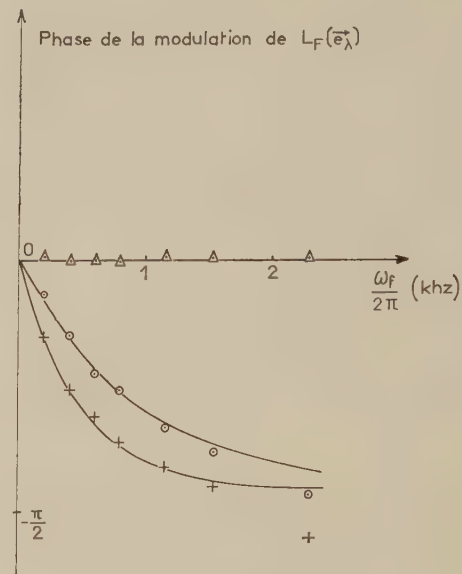


FIG. 37.

Composante $\frac{1}{2}$: Δ $\vec{e}_{\lambda_0}$ cohérent, $\vec{e}_\lambda$ non cohérent.
 $+$ $\vec{e}_{\lambda_0}$ non cohérent, $\vec{e}_\lambda$ cohérent.
 Composante $\frac{3}{2}$: $\odot$ $\vec{e}_{\lambda_0}$ non cohérent, $\vec{e}_\lambda$ cohérent.

à partir d'un seul d'entre eux. Nous constatons que l'accord entre la théorie et l'expérience est bon sauf, dans le cas β , pour les valeurs les plus élevées de ω_f . Ceci se comprend d'ailleurs aisément : le signal de modulation M_p est en effet beaucoup plus petit pour ces points puisque l'amplitude a_p a beaucoup diminué (voir fig. 36). La précision des mesures est donc moins bonne.

En conclusion, il apparaît que nous avons pu vérifier quantitativement la plupart des prévisions théoriques concernant la modulation de $L_F(\vec{e}_\lambda)$. Il serait intéressant d'opérer en champ beaucoup plus élevé de façon à vérifier la variation avec ω_f de a_p/a_c et $\varphi_p - \varphi_c$ dans le cas α , mais cela nécessiterait un équipement que nous ne possédons pas.

CHAPITRE VIII

DÉTECTION OPTIQUE DE LA RÉSONANCE MAGNÉTIQUE PAR LA MODULATION DE L'ABSORPTION

A. — Introduction

1° Buts de cette étude. — Dans la plupart des expériences que nous avons décrites, le signal de modulation

fourni par la cellule photoélectrique C joue un rôle très important. Nous l'avons utilisé aussi bien pour tracer des courbes de résonance magnétique que pour étudier des phénomènes transitoires. Les avantages

présentés par ce procédé de détection tant en ce qui concerne la précision que la rapidité des mesures ont été longuement soulignés. Rappelons que l'excitation lumineuse *ne doit pas être* « broad line » (si elle l'est, la matrice $A_{\mu\mu'}$ est un multiple de la matrice unité, et l'on ne peut utiliser le processus d'absorption pour détecter la résonance magnétique (cf. § III, A, 4)).

C'est Dehmelt (21) qui, le premier, suggéra un tel procédé de détection, utilisé par Bell et Bloom (6) sur les alcalins et connu sous le nom d'expérience de « faisceau croisé ». La théorie que nous avons présentée permet d'évaluer quantitativement la perturbation apportée par le faisceau croisé à la cohérence hertzienne qu'il permet de détecter. Nous avons montré qu'à tout faisceau lumineux était associée une « relaxation optique » très semblable à une relaxation thermique habituelle. Il est donc possible de calculer entièrement le signal de modulation fourni par C. Les calculs étant particulièrement simples dans le cas de l'isotope ^{199}Hg , il nous a semblé intéressant de procéder à une vérification quantitative des prévisions théoriques. Nous verrons par exemple dans le § B de ce chapitre qu'il est possible de prévoir exactement la *forme des raies de résonance magnétique* détectées sur le signal de modulation.

Il est possible de faire un parallèle très étroit entre le procédé de détection optique utilisant la modulation de l'absorption et le procédé de détection *radioélectrique* habituel de la résonance magnétique. En effet, *dans les deux cas, le signal est proportionnel à l'aimantation transversale globale* ($\sigma_{1/2-1/2}$) (Rappelons que le procédé de détection radioélectrique utilise la force électromotrice sinusoïdale induite dans une bobine par la rotation de l'aimantation transversale globale de l'échantillon). Ceci suggère d'étendre aux méthodes optiques toute une série de techniques mises au point à propos des méthodes radioélectriques, en particulier, les techniques utilisant les *pulses* de radiofréquence. Nous avons réalisé certaines de ces expériences et les décrivons dans le § C de ce chapitre.

Le dispositif expérimental est celui qui est représenté sur la figure 15. Le faisceau 1 est le faisceau de pompage ; le faisceau 2, le faisceau « croisé ».

2° Rappel des résultats théoriques. — Nous rappelons ici très brièvement les équations qui nous serviront dans la suite de ce chapitre. Les divers paramètres relatifs aux faisceaux 1 et 2 sont repérés par les indices (1) et (2).

a) Cas où il n'y a pas de champ de radiofréquence. — La distance énergétique entre les deux sous-niveaux n'est pas ω_f , mais $\omega_f + \varepsilon^{(1)} + \varepsilon^{(2)}$ où $\varepsilon^{(1)}$ et $\varepsilon^{(2)}$ sont les déplacements énergétiques associés aux faisceaux 1 et 2.

— Désignons par M_z l'aimantation *longitudinale* proportionnelle à la différence, $\sigma_{1/2-1/2} - \sigma_{-1/2-1/2}$, entre les populations des deux sous-niveaux Zeeman.

Le faisceau 1 tend à concentrer tous les atomes dans le sous-niveau $+1/2$. Il fait donc tendre M_z vers la valeur M_0 (aimantation longitudinale à saturation) avec une constante de temps $T_1^{(1)}$ qui est le temps de relaxation longitudinal « optique » associé au faisceau 1.

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{M_0 - M_z}{T_1^{(1)}}.$$

Par contre, le faisceau 2 et les processus de relaxation thermique détruisent M_z avec des constantes de temps $T_1^{(2)}$ et Θ_1 , de sorte que l'évolution globale de M_z s'écrit :

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{M_0 - M_z}{T_1^{(1)}} - \frac{M_z}{T_1^{(2)}} - \frac{M_z}{\Theta_1}$$

ou encore :

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{M'_0 - M_z}{\tau_1} \quad (\text{VIII, 1})$$

avec :

$$\frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{T_1^{(1)}} + \frac{1}{T_1^{(2)}} + \frac{1}{\Theta_1}. \quad (\text{VIII, 2})$$

$$M'_0 = M_0 \frac{\tau_1}{T_1^{(1)}}. \quad (\text{VIII, 3})$$

— D'un autre côté, l'évolution globale de $\sigma_{1/2-1/2}$ (aimantation transversale) est décrite par :

$$\frac{d\sigma_{1/2-1/2}}{dt} = - \left[\frac{1}{\tau_2} + i(\omega_f + \varepsilon^{(1)} + \varepsilon^{(2)}) \right] \sigma_{1/2-1/2} \quad (\text{VIII, 4})$$

avec :

$$\frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{T_2^{(1)}} + \frac{1}{T_2^{(2)}} + \frac{1}{\Theta_2} \quad (\text{VIII, 5})$$

($T_2^{(1)}$, $T_2^{(2)}$, Θ_2 sont les temps de relaxation transversaux optique et thermique).

— En résumé, les aimantations, longitudinale et transversale, tendent vers leurs valeurs d'équilibre, M'_0 et 0, avec des constantes de temps τ_1 et τ_2 . Tout se passe donc comme si l'on avait un processus de relaxation unique décrit par les temps τ_1 et τ_2 .

b) Cas où il y a un champ de radiofréquence. — Nous avons indiqué dans la partie théorique (cf. § III, D, 8) comment il fallait modifier les résultats précédents. Le hamiltonien de radiofréquence s'écrit :

$$\mathcal{H}_{\text{RF}} = \frac{\gamma f H_1}{2} [I_+ e^{-i\omega t} + I_- e^{i\omega t}].$$

Il faut alors se placer dans le référentiel R tournant à la fréquence $\omega/2\pi$ autour de H_0 . La matrice densité $\tilde{\sigma}$ dans le référentiel R est liée à σ par les relations :

$$\tilde{\sigma}_{1/2-1/2} = \sigma_{1/2-1/2} \quad \tilde{\sigma}_{-1/2-1/2} = \sigma_{-1/2-1/2} \quad \tilde{\sigma}_{1/2-1/2} = e^{i\omega t} \sigma_{1/2-1/2}$$

Si nous posons :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta\omega = \omega - \omega_f - \varepsilon^{(1)} - \varepsilon^{(2)} \\ \gamma_f H_1 = \omega_1 \\ u = \tilde{\sigma}_{1/2-1/2} + \tilde{\sigma}_{-1/2 \ 1/2} \\ \nu = i(\tilde{\sigma}_{1/2-1/2} - \tilde{\sigma}_{-1/2 \ 1/2}) \end{array} \right. \quad (\text{VIII}, 6)$$

on obtient aisément par la méthode que nous avons décrite (§ III, D, 8) le système suivant d'équations d'évolution :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dM_z}{dt} = \frac{M'_0 - M_z}{\tau_1} + \omega_1 \nu \\ \frac{du}{dt} = -\frac{1}{\tau_2} u + \Delta\omega \nu \\ \frac{d\nu}{dt} = -\omega_1 M_z - \Delta\omega u - \frac{1}{\tau_2} \nu \end{array} \right. \quad (\text{VIII}, 7)$$

Ce système est identique aux équations macroscopiques de Bloch (35). Ceci ne doit pas nous surprendre puisque les effets perturbateurs associés aux deux faisceaux 1 et 2 ressemblent aux effets d'un processus de relaxation thermique. Il est également identique à celui étudié par Cagnac dans sa thèse (14) (seules les définitions de τ_1 et τ_2 changent puisque nous utilisons deux faisceaux lumineux).

Il est possible de donner de u et ν une image physique très simple : soit OXYZ le référentiel tournant R. OZ a la direction de H_0 . Dans R, le champ de radiofréquence H_1 est immobile et est porté par OX (fig. 38).

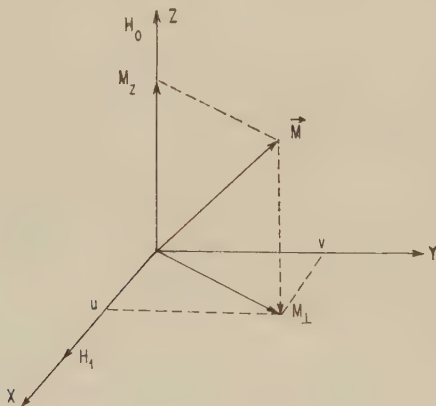


FIG. 38.

Les quantités u , ν , M_z sont les projections suivant les trois axes OX, OY, OZ de l'aimantation macroscopique $\vec{M}$ de la vapeur. M_z est l'aimantation longitudinale ; la projection $M_\perp$ de $\vec{M}$ sur le plan XOY, l'aimantation transversale.

Pour avoir le mouvement complet de $\vec{M}$ dans le réfé-

rentiel du laboratoire (et c'est ce mouvement que l'on observe en fait), il faut composer le mouvement lent de $\vec{M}$ dans le référentiel R, décrit par les équations (VIII, 7), et la rotation rapide de R à la fréquence $\omega/2\pi$ autour de H_0 . u est donc la composante de l'aimantation transversale qui tourne *en phase* avec le champ de radiofréquence H_1 , ν la composante *en quadrature*.

c) **Les signaux de détection optique.** — Étant proportionnelle à $\sigma_{1/2-1/2}$, la modulation du courant photoélectrique de C à la fréquence $\omega/2\pi$ décrit le mouvement principal de l'aimantation transversale (rotation du référentiel R) ; la variation lente de l'amplitude de cette modulation décrit l'évolution lente de $|M_\perp|$ dans R (S'il n'y a pas de champ de radiofréquence, il faut remplacer dans les énoncés précédents ω par $\omega_f + \varepsilon^{(1)} + \varepsilon^{(2)}$, « rotation de R » par « précession de Larmor », « mouvement lent dans R » par « amortissement de la précession libre »). On peut observer soit u soit ν (si l'on fait la résonance magnétique) en prenant un détecteur sensible à la phase et utilisant pour signal de référence un voltage prélevé sur la sortie de l'émetteur de radiofréquence.

— Enfin, rappelons qu'on peut, comme Cagnac, observer M_z en utilisant la composante à la fréquence zéro de la lumière de fluorescence.

En résumé, nous voyons qu'il est possible d'observer par des méthodes de détection optique l'une quelconque des quantités M_z , $M_\perp$, u , ν .

3° Régime statique. Régime dynamique. — En l'absence de radiofréquence, l'aimantation a une certaine position d'équilibre ($M_z = M'_0$, $M_\perp = 0$).

— En présence de radiofréquence, le système (VIII, 7) qui décrit le mouvement lent de $\vec{M}$ dans R a une *solution stationnaire* $\vec{M}^{(s)}$ ($M_z^{(s)}$, $u^{(s)}$, $\nu^{(s)}$) qui représente la position d'équilibre de $\vec{M}$ dans R. Cette position d'équilibre dépend de l'écart à résonance $\Delta\omega$, de $\omega_1 = \gamma_f H_1$, et des temps de relaxation « globaux » τ_1 et τ_2 .

Le tracé d'une courbe de résonance magnétique revient à étudier la variation avec $\Delta\omega$ de l'une quelconque des composantes de $\vec{M}^{(s)}$, tous les autres paramètres restant constants. L'ensemble des courbes de résonance qui correspondent à plusieurs valeurs de $\omega_1 = \gamma_f H_1$ constitue un *réseau*. L'étude correspondante est une étude en *régime statique*.

Nous avons tracé des réseaux en utilisant le signal de modulation fourni par C (nous observons soit $M_\perp^{(s)}$, soit $u^{(s)}$, soit $\nu^{(s)}$). La comparaison entre les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques que l'on peut faire à partir des équations (VIII, 7) est présentée dans le § B de ce chapitre.

— Nous avons également fait subir à l'amplitude H_1 du champ de radiofréquence des variations brusques entre la valeur 0 et la valeur H_1 . Quatre sortes de varia-

tions différentes ont été réalisées. Elles sont représentées sur la figure 39.

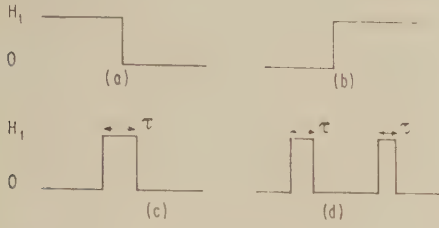


FIG. 39.

La réponse du système atomique à ces quatre sortes de variation de H_1 peut être prévue aisément à partir du système (VIII, 7). Nous l'observons expérimentalement sous forme de *transitoires* sur le signal de modulation fourni par C. L'étude correspondante, qui est une étude en *régime dynamique* est décrite dans le § C.

Indiquons enfin comment nous réalisons expérimentalement les quatre variations brusques de H_1 représentées sur la figure 39. Pour (a) et (b), nous utilisons un court-circuit sur la sortie de l'émetteur de radiofréquence qui peut être, soit établi (a), soit supprimé (b), en un temps très court. Pour (c), l'émetteur de radiofréquence est bloqué en permanence par une tension négative appliquée sur la grille d'une des lampes de cet émetteur. Il est débloquent au moyen d'un pulse de tension positive, qui est fourni par un générateur de pulses (Tektronix, type 161). Il est possible de faire varier de façon continue la largeur τ de ce pulse. Pour (d), nous utilisons deux générateurs de pulses distincts. Nous pouvons faire varier de façon continue l'intervalle de temps qui sépare ces deux pulses et leurs largeurs τ et τ' .

B. — Étude en régime statique

La solution stationnaire du système (VIII, 7) s'obtient sans difficultés. Posons :

$$\begin{cases} \Delta\Omega = \Delta\omega\tau_2 \\ \Omega_1 = \omega_1\sqrt{\tau_1\tau_2} \end{cases} \quad (\text{VIII, 8})$$

Il vient :

$$\begin{cases} M_z^{(s)} = M'_0 \left[1 - \frac{\Omega_1^2}{\Delta\Omega^2 + 1 + \Omega_1^2} \right] & (\text{VIII, 9, a}) \\ u^{(s)} = -M'_0 \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}} \frac{\Omega_1 \Delta\Omega}{\Delta\Omega^2 + 1 + \Omega_1^2} & (\text{VIII, 9, b}) \\ v^{(s)} = -M'_0 \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}} \frac{\Omega_1}{\Delta\Omega^2 + 1 + \Omega_1^2} & (\text{VIII, 9, c}) \end{cases}$$

L'expression du module de $M_{\perp}^{(s)}$, $|M_{\perp}^{(s)}| = \sqrt{u^{(s)^2} + v^{(s)^2}}$, s'écrit :

$$|M_{\perp}^{(s)}| = M'_0 \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}} \frac{\Omega_1 \sqrt{1 + \Delta\Omega^2}}{\Delta\Omega^2 + 1 + \Omega_1^2} \quad (\text{VIII, 9, d})$$

1° **Étude d'un réseau.** — La figure 40 représente un réseau de courbes de résonance magnétique prises sur la modulation de l'absorption du faisceau 2.

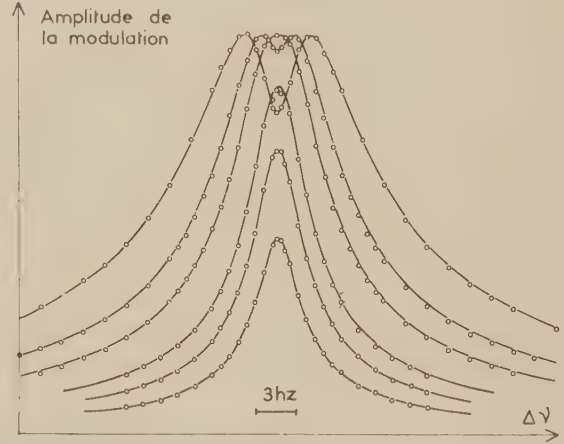


FIG. 40.

Chaque courbe correspond à une valeur bien définie de l'intensité H_1 du champ de radiofréquence (cette valeur est repérée, comme dans les expériences de Cagnac, par un voltmètre électronique placé aux bornes des bobines de radiofréquence). Les courbes les plus larges correspondent aux valeurs de H_1 les plus grandes. Nous portons, en abscisses, les indications du potentiomètre de Leeds-Northrup mesurant le courant dans les bobines de Helmholtz créant H_0 (nous opérons à fréquence fixe et faisons varier le champ magnétique statique H_0), en ordonnées, l'amplitude de la modulation du courant photoélectrique de C. Cette amplitude est mesurée en envoyant la sortie de l'amplificateur sélectif (qui amplifie le signal de modulation) aux bornes d'un millivoltmètre électronique. Nous n'utilisons pas de détection en phase avec le champ de radiofréquence. Le signal mesuré est donc proportionnel à $|M_{\perp}^{(s)}|$. Plusieurs faits sont à noter.

a) Nous voyons que la courbe de résonance magnétique présente un renversement pour les fortes valeurs de H_1 . Il ne peut s'agir d'un renversement du type Majorana-Brossel (10), puisqu'il n'y a que deux sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental.

b) Lorsque la courbe de résonance présente un renversement, l'amplitude des deux maxima est indépendante de H_1 .

c) L'amplitude à résonance ($\Delta\omega = 0$) dépend de H_1 . Elle passe par un maximum lorsque H_1 croît. Ce phénomène est étudié plus en détail sur la figure 41, où nous portons en abscisses $\gamma_f H_1$, en ordonnées l'amplitude à résonance.

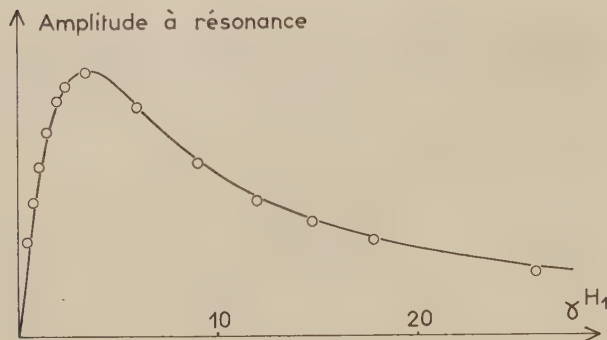


FIG. 41.

— Pour comparer les résultats précédents aux prévisions théoriques, nous utilisons (VIII, 9). Le signal détecté étant $|M_1^{(s)}|$, la forme de raie théorique est donnée par l'expression (VIII, 9, d). Elle dépend de $\Delta\omega$, $\omega_1 = \gamma_f H_1$, τ_1 , τ_2 . $\Delta\omega$ se détermine aisément à partir des indications lues sur le potentiomètre de Leeds-Northrup qui repère le courant magnétisant produisant H_0 . En observant les transitoires de pompage optique et de radiofréquence (voir le § suivant), nous verrons qu'il est possible de mesurer de façon indépendante et avec précision les valeurs de τ_1 , τ_2 , $\gamma_f H_1$ qui correspondent au réseau de la figure 40. L'ensemble du réseau peut donc être calculé *entièrement* à une constante multiplicative près, qui est la même pour toutes les courbes (et qui représente en quelque sorte le coefficient de proportionnalité entre le voltage mesuré par le millivoltmètre et $|M_1^{(s)}|$). Nous déterminons cette constante à partir d'un seul des points expérimentaux appartenant à l'une quelconque des courbes du réseau. Toutes les courbes sont alors déterminées sans aucun autre ajustement.

C'est ainsi que nous avons procédé pour dessiner les courbes de la figure 40. Les points sont les points expérimentaux. Nous voyons que l'accord entre la théorie et l'expérience est excellent.

La courbe de la figure 41 est dessinée elle aussi à partir de la formule théorique :

$$M_0' \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}} \frac{\Omega_1}{1 + \Omega_1^2}$$

qui donne la valeur de l'amplitude à résonance en fonction de $\gamma_f H_1$ (cette courbe est déterminée sans aucun ajustement puisque la constante multiplicative est déterminée à partir du réseau).

— Toutes les caractéristiques du réseau de la figure 40, que nous avons signalées plus haut, sont donc expliquées quantitativement par la théorie. La valeur de ω_1 au-dessus de laquelle se produit le renversement et qui correspond également à la valeur maximum de l'amplitude à résonance est déterminée par :

$$\Omega_1 = \omega_1 \sqrt{\tau_1 \tau_2} = 1.$$

La valeur commune à tous les maxima des courbes de résonance lorsque $\Omega_1 \geq 1$ est égale à $\frac{M_0'}{2} \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}}$.

L'origine du renversement est la suivante : chaque courbe de résonance est la racine carrée de la somme du carré, $v^{(s)}$, d'une courbe d'absorption et du carré, $u^{(s)}$, d'une courbe de dispersion. Pour les fortes valeurs de Ω_1 , la courbe de dispersion l'emporte sur la courbe d'absorption, ce qui explique l'apparition du renversement.

2° Étude de $u^{(s)}$ et $v^{(s)}$. — Pour observer $u^{(s)}$ et $v^{(s)}$, composantes en phase et en quadrature avec le champ de radiofréquence, nous utilisons une détection synchrone en prenant comme référence un signal prélevé sur la sortie de l'émetteur de radiofréquence. Un déphaseur permet de faire varier de façon continue la phase du signal de référence. Le signal continu obtenu après la détection synchrone est mesuré au moyen d'un voltmètre à lampes à grande impédance (50 M Ω).

D'après l'expression (VIII, 9, b), $u^{(s)}$ varie avec $\Delta\Omega$ suivant une courbe de dispersion. Nous commençons par régler la phase du signal de référence de façon à observer une courbe de dispersion (lorsque nous ne sommes pas réglés tout à fait à la dispersion, les déviations maxima, positive et négative, qu'on lit sur le millivoltmètre quand $\Delta\Omega$ varie, ne sont pas égales. Nous mesurons le rapport de ces deux déviations pour plusieurs positions du potentiomètre du déphaseur et

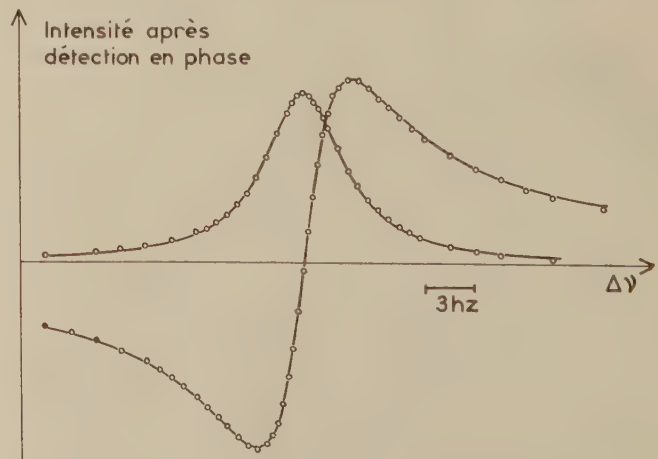


FIG. 42.

déterminons ensuite par extrapolation la position exacte qui correspond à l'égalité des déviations, c'est-à-dire à la dispersion. Ce réglage est très précis).

La figure 42 montre un exemple des résultats expérimentaux. La courbe de dispersion est obtenue après que le déphaseur ait été réglé comme nous venons de l'expliquer. Puis nous changeons la phase de $\pi/2$ (un pont formé d'une capacité et d'une résistance permet de le faire sans qu'il soit besoin de régler à nouveau le déphaseur). Nous obtenons ainsi la courbe d'absorption de la figure 42. Ces deux courbes représentent respectivement les variations de $u^{(s)}$ et $v^{(s)}$ avec $\Delta\Omega$. Les formes de raies théoriques sont données par les expressions théoriques (VIII, 9, *b*) et (VIII, 9, *c*). Comme nous savons mesurer par ailleurs (§ C) les valeurs de τ_1 , τ_2 , ω_1 , nous pouvons calculer entièrement les deux courbes de la figure 42 à une constante multiplicative près qui est la même pour les deux courbes et que nous déterminons à partir d'un seul point expérimental. C'est ainsi que nous avons procédé pour dessiner les deux courbes de la figure 42. Les points sont les points expérimentaux. L'accord entre l'expérience et la théorie est excellent.

Le signal de dispersion est extrêmement commode pour pointer avec précision et rapidité le centre de la

raie de résonance magnétique. Comme c'est un signal continu qui change de signe à la résonance, on peut songer également à l'utiliser pour stabiliser automatiquement le champ magnétique à la valeur qui correspond à la résonance. La qualité du rapport signal sur bruit et la finesse des raies permettent d'espérer une très bonne stabilisation. L'expérience est en cours de réalisation.

C. — Étude en régime dynamique

Le signal observé dans toutes les expériences décrites ci-dessous est l'amplitude de la modulation du courant photoélectrique de C. Nous n'utilisons pas de détection synchrone. La grandeur du signal est donc proportionnelle à $|M_{\perp}|$. La bande passante de l'amplificateur sélectif est suffisamment large pour qu'il n'y ait pas de déformation des transitoires. La sortie de l'amplificateur sélectif est envoyée sur un oscillographe cathodique sans que la modulation ne soit redressée. Nous avons donc une *porteuse* à la fréquence $\omega/2\pi$ (ou :

$$\frac{\omega_f + \varepsilon^{(1)} + \varepsilon^{(2)}}{2\pi})$$

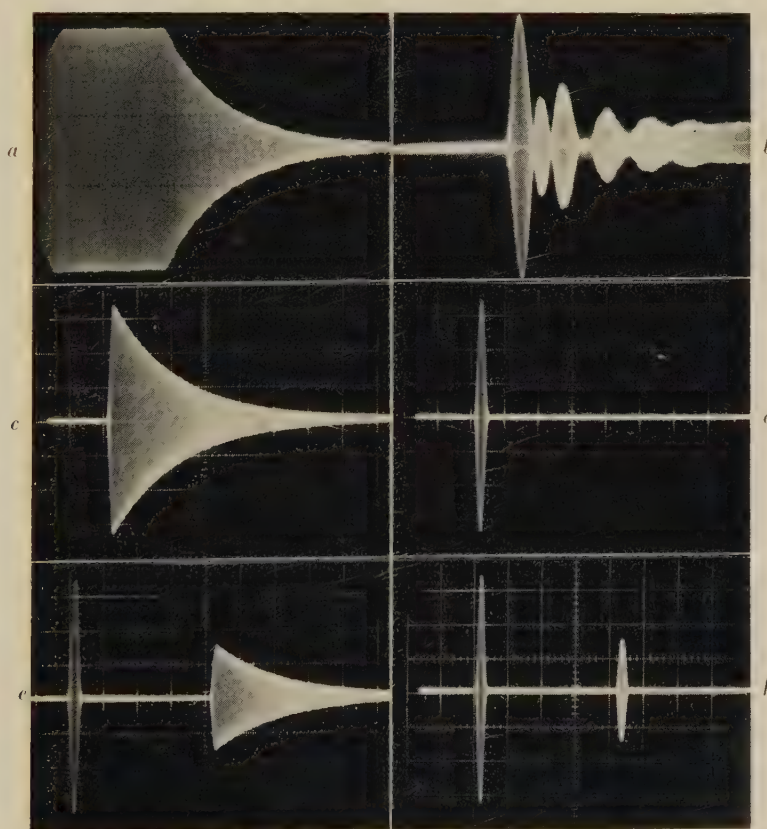


FIG. 43.

La variation de l'amplitude de cette porteuse représente la réponse de $|M_{\perp}|$ aux variations brusques de H_1 , représentées sur la figure 39. Notons que le balayage de l'oscillographe est trop lent pour que l'on résolve cette porteuse.

1° Transitoires de pompage optique. — C'est par définition la réponse observée lorsqu'on fait subir à H_1 la variation 39, *a*. $|M_{\perp}|$ décroît de la valeur d'équilibre $|M_{\perp}^{(s)}|$ en présence de radiofréquence à zéro (valeur d'équilibre en l'absence de radiofréquence) avec une constante de temps τ_2 . On peut dire encore que l'on observe la *précession libre de l'aimantation transversale*.

La figure 43, *a* est un exemple d'une telle transitoire. Nous avons déjà décrit ces expériences dans le chapitre VI (signalons toutefois que dans l'expérience décrite au chapitre VI, on coupait simultanément H_1 et le faisceau 1. Dans ce cas, la modulation tendait vers zéro avec une constante de temps $1/\tau_2$ égale à $\frac{1}{T_2^{(2)}} + \frac{1}{\Theta_2}$ au lieu de $\frac{1}{T_2^{(1)}} + \frac{1}{T_2^{(2)}} + \frac{1}{\Theta_2}$.

Pour avoir le signal de précession libre le plus grand possible, il y a intérêt à partir de la valeur de $|M_{\perp}^{(s)}|$ la plus grande possible. Nous avons vu dans le § précédent que cette valeur maximum était égale à $\frac{M'_0}{2} \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}}$.

Rappelons enfin que la transitoire de pompage optique observée sur la lumière de fluorescence (composante à la fréquence zéro de $L_F(\vec{e}_\lambda)$) permet d'observer la réponse de M_z à la variation 39, *a*. De telles transitoires ont été déjà observées par Cagnac (nous les observons également au moyen du photomultiplicateur PM). Elles permettent de mesurer τ_1 .

Nous voyons en résumé que les transitoires de pompage optique observées sur $|M_{\perp}|$ et M_z permettent de mesurer avec précision τ_2 et τ_1 .

2° Transitoires de radiofréquence. — C'est la réponse observée lorsqu'on réalise les variations 39, *b*. L'étude de ces transitoires sur M_z (observées sur L_F) est décrite en détail dans la thèse de Cagnac. A résonance ($\Delta\omega = 0$), M_z atteint sa nouvelle valeur d'équilibre après une série d'oscillations de fréquence $\omega_1/2\pi$, amorties avec une constante de temps τ_{12} telle que :

$$\frac{1}{\tau_{12}} = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right].$$

Des phénomènes très analogues se produisent pour $M_{\perp}$ et sont observables sur la modulation du faisceau 2. A résonance ($\Delta\omega = 0$), on constate en effet sur le système (VIII, 7) que u reste toujours nul lorsqu'on applique H_1 ; $M_{\perp}$ est alors égal à ν et les équations

d'évolution de ν sont très semblables à celles de M_z . $M_{\perp}$ atteint donc sa valeur d'équilibre après une série d'oscillations amorties très semblables à celles de M_z (même fréquence $\omega_1/2\pi$ et même amortissement τ_{12}).

La figure 43, *b* est un exemple d'une telle transitoire (on a l'impression que la sinusoïde amortie est irrégulière mais ceci est dû uniquement au fait que la grandeur du signal représenté en 43 *b* est $|M_{\perp}|$ et non $M_{\perp}$).

Nous nous sommes servis des transitoires de radiofréquence à résonance (observées aussi bien sur $|M_{\perp}|$ que sur M_z) pour mesurer $\omega_1 = \gamma_f H_1$ (rappelons que Cagnac utilisait ces transitoires (observées sur M_z), pour mesurer τ_2 , à partir de τ_{12} et τ_1).

3° Pulses de radiofréquence. — Nous utilisons maintenant une variation de H_1 dans le temps représentée par la figure 39 *c*. La durée du « pulse » est égale à τ . Nous supposons dans tout ce qui suit que nous sommes à résonance ($\Delta\omega = 0$) et que la durée du pulse τ est très courte devant les temps de relaxation τ_1 et τ_2 .

Étudions le mouvement de l'aimantation $\vec{M}$ dans le référentiel tournant R pendant la durée du pulse (fig. 44).

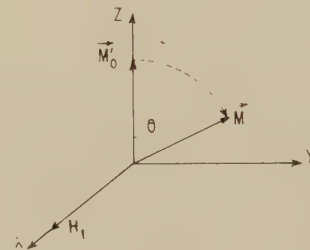


FIG. 44.

Comme nous sommes à résonance, c'est *uniquement* le champ H_1 qui agit sur $\vec{M}$ dans R. Comme $\tau \ll \tau_1, \tau_2$, nous pouvons ignorer les processus de relaxation (optique et thermique) pendant la durée du pulse τ .

Le mouvement de $\vec{M}$ est alors très simple à décrire. La position initiale de $\vec{M}$ est la position d'équilibre $\vec{M}_0$ ($M_z = M'_0$, $M_{\perp} = 0$) en l'absence de radiofréquence. $\vec{M}$ tourne dans le plan ZOY autour de H_1 avec une vitesse angulaire ω_1 . A la fin du pulse, l'angle de rotation, θ , est égal à $\theta = \omega_1 \tau$. Les mouvements de M_z et $M_{\perp}$ se déduisent du mouvement de $\vec{M}$ par projection sur OZ et OY.

a) Pulse de $\pi/2$. — Sa durée est ajustée en sorte que $\theta = \pi/2$. La figure 43 *c* représente le phénomène transitoire observé sur $|M_{\perp}|$ lorsqu'on fait un pulse de $\pi/2$: $|M_{\perp}|$ est initialement nul ; au cours du pulse, $|M_{\perp}|$ croît de 0 à M'_0 ; puis, après le pulse, $|M_{\perp}|$

retourne à sa valeur d'équilibre 0 avec une constante de temps τ_2 (précession libre).

Les pulses de $\pi/2$ sont particulièrement intéressants lorsqu'on veut mesurer τ_2 . En effet, le signal de précession libre, après la fin du pulse, part de la valeur M'_0 tandis que dans les transitoires de pompage optique décrites plus haut, il part d'une valeur qui est au plus égale à $\frac{M'_0}{2} \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}}$. On gagne donc ainsi un facteur $2 \sqrt{\frac{\tau_1}{\tau_2}}$ qui peut être appréciable puisqu'on a, en général, $\tau_1 \geq \tau_2$ (La sensibilité de l'oscillographe n'est évidemment pas la même pour 43 a et 43 c).

b) Pulse de π . — Il correspond à $\theta = \pi$. La figure 43 d représente le phénomène transitoire observé sur $M_\perp$ lorsqu'on fait un pulse de π : $|M_\perp|$ part de 0, croît jusqu'à la valeur maximum M'_0 puis décroît jusqu'à 0

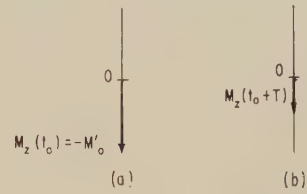


FIG. 45.

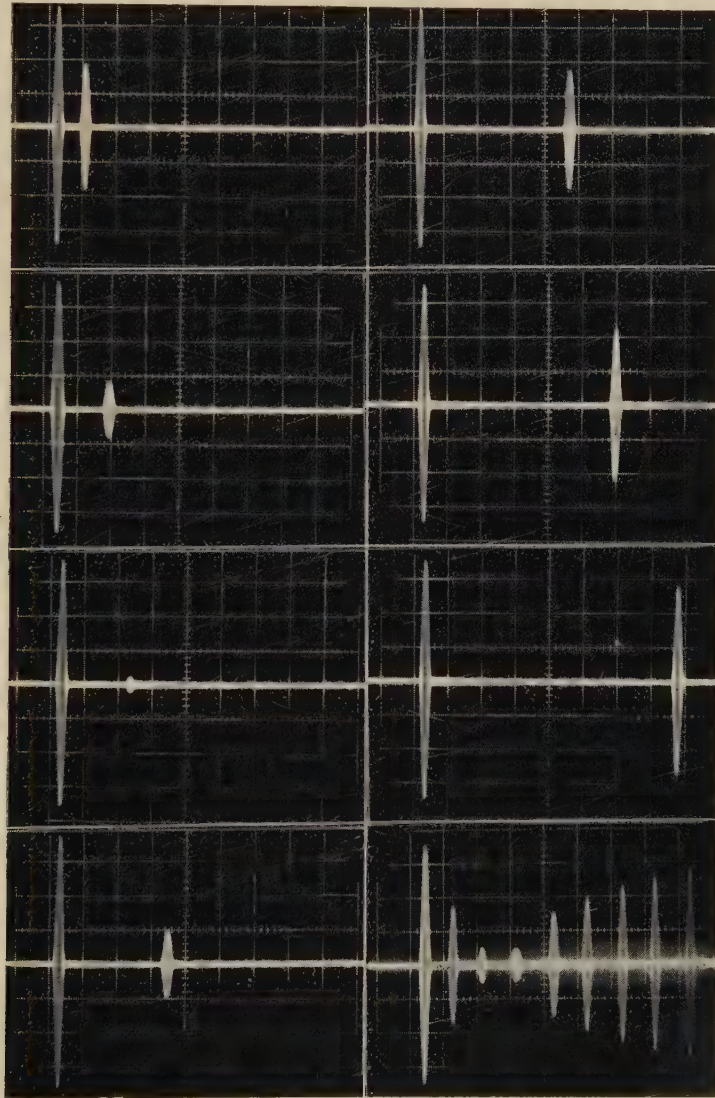


FIG. 46.

(Tout ceci se prévoit aisément à partir de la figure 44). Après le pulse $|M_z|$ ne varie pas puisque sa valeur est alors la valeur d'équilibre ($M_z = 0$).

Les pulses de π permettent ainsi de lire directement sur l'oscillographe la valeur de M_0 . Ils sont également très intéressants pour l'étude de la *relaxation longitudinale* comme nous allons le voir maintenant.

4° Séquences de deux pulses. — Supposons que l'on effectue un *premier pulse* de π . A la fin du pulse (instant t_0), l'aimantation $\vec{M}$ a tourné de π . Elle est portée par OZ et l'on a $M_z(t_0) = -M_0$ (fig. 45 a).

Après le pulse, l'aimantation longitudinale M_z (M_z reste toujours nul au cours du temps) tend vers sa valeur d'équilibre, $+M_0$, avec une constante de temps τ_1 par suite de la relaxation optique et thermique. A l'instant $t_0 + T$ (fig. 45 b), l'aimantation M_z a une valeur, $M_z(t_0 + T)$ qui est égale à :

$$M_z(t_0 + T) = M_0'[1 - 2e^{-T/\tau_1}] \quad (\text{VIII, 10})$$

(la formule précédente donne bien, en effet, $M_z(t_0) = -M_0'$ $M_z(+\infty) = M_0'$).

Si à l'instant $t_0 + T$, on fait un *deuxième pulse* de $\pi/2$ (ou de π), on observe des phénomènes tout à fait identiques à ceux décrits dans le paragraphe précédent et représentés sur les figures 43 c et 43 d. La seule différence est qu'il faut alors remplacer M_0' par $M_z(t_0 + T)$.

Les figures 43 e (ou 43 f) sont des exemples des phénomènes observés lorsqu'on fait une séquence de deux pulses π , $\pi/2$ (ou π , π). Nous voyons qu'on peut ainsi lire directement sur l'oscillographe d'une part le temps T qui sépare les deux pulses (le balayage étant étalonné), d'autre part les valeurs de $|M_z|$ aux instants t_0 et $t_0 + T$.

Il suffit alors de faire varier T pour avoir une méthode de mesure très simple de τ_1 au moyen du faisceau 2. Les photos de la figure 46 (classées dans l'ordre, de haut en bas, puis de gauche à droite) correspondent à des séquences de deux pulses π , π séparés par des intervalles T de plus en plus grands. On peut également prendre sur la même photo toutes les séquences (dernière photo en bas, à droite). Nous voyons ainsi qu'on peut suivre, point par point, le retour à l'équilibre de M_z (On constate en particulier que M_z variant de $-M_0'$ à $+M_0'$ passe par la valeur 0 pour une certaine valeur de T qui, d'après (VIII, 10) est égale à $\tau_1 \log 2$). Nous avons vérifié que la valeur de τ_1 , mesurée par cette technique, coïncidait avec celle donnée par une transitoire de pompage optique observée sur M_z (Notons là encore que nous gagnons un facteur 2, puisque la variation totale de M_z n'est plus de zéro à M_0' , mais de $-M_0'$ à $+M_0'$).

Il est clair que de très nombreuses variantes de ces diverses expériences peuvent être réalisées. Nous n'insisterons pas davantage sur cette question.

D. — Possibilités offertes par la méthode de détection optique utilisant la modulation de l'absorption

Nous terminerons ce chapitre par quelques considérations sur les possibilités offertes par cette méthode de détection optique.

a) Pour des raisons qui ont déjà été analysés plus haut (cf. § V, B, 2), le gain en précision et en rapport signal sur bruit par rapport aux autres méthodes de détection optique (celles utilisées par Cagnac, par exemple) est considérable. Ces avantages apparaissent de façon très frappante dans le cas du pompage optique de ^{201}Hg . Dans ce cas, en effet, les temps de relaxation thermique sont nettement plus courts que ceux de ^{199}Hg et les mesures moins faciles. L'observation des transitoires sur la modulation de l'absorption ne pose cependant pas de problèmes alors que l'observation des transitoires sur la lumière de fluorescence est très difficile (rappelons que Cagnac n'avait pu les observer). Cette méthode peut donc se révéler très utile pour l'étude de cas moins favorables que celui de ^{199}Hg .

b) Dans le cas où le spin est supérieur à $1/2$, il y a plusieurs temps de relaxation transversaux et longitudinaux. Le signal de modulation de l'absorption à la fréquence $\omega/2\pi$, $L_\lambda^{(1)}$, est alors une *combinaison linéaire des éléments non diagonaux* $\sigma_{\mu\mu'}$ ($|\mu - \mu'| = 1$) de la matrice densité (cf. § III, A, 5) (Rappelons qu'il y a également dans ce cas un signal de modulation $L_\lambda^{(2)}$ à la fréquence $2 \frac{\omega}{2\pi}$). Les coefficients de ces combinaisons linéaires, qui sont entièrement calculables, dépendent de la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ du faisceau croisé. En faisant varier cette polarisation, on peut donc observer plusieurs combinaisons linéaires différentes des éléments non diagonaux de la matrice densité et mettre ainsi en évidence l'existence de plusieurs temps de relaxation différents et les mesurer.

Nous avons pu appliquer cette méthode avec succès à l'étude de la relaxation thermique de l'isotope ^{201}Hg par les parois de la cellule O. Nous avons constaté effectivement que les temps de relaxation transversaux thermiques (obtenus par extrapolation à intensité lumineuse nulle) étaient différents suivant la polarisation choisie pour le faisceau croisé, c'est-à-dire suivant la combinaison linéaire d'éléments non diagonaux qui était détectée. Nous avons observé aussi les transitoires

sur la modulation à la fréquence $2 \cdot \frac{\omega}{2\pi}$. L'ensemble des résultats obtenus nous a permis, par comparaison avec les prévisions d'un modèle théorique simple de relaxation, de prouver le caractère *quadrupolaire* de la relaxation thermique de ^{201}Hg . Cette étude sera publiée ultérieurement.

c) Une autre application intéressante de cette méthode de détection optique est la possibilité d'observer

ver des *échos de spin* (38) sur une vapeur orientée. Le grand intérêt de la technique des échos de spin est qu'elle permet d'éliminer l'effet des inhomogénéités du champ statique H_0 et de fournir ainsi une mesure du temps de relaxation transversal *intrinsèque*. Dans le cas d'une vapeur pure, les atomes rebondissent d'une paroi à l'autre, d'où un *moyennage par le mouvement* qui élimine en grande partie les inhomogénéités statiques ΔH_0 . Par contre, si les atomes de la vapeur sont emprisonnés dans un gaz étranger, le moyennage par le mouvement

des inhomogénéités statiques ΔH_0 ne joue pratiquement plus et elles peuvent être très gênantes. La technique des échos de spin détectés au moyen d'un faisceau croisé peut donc se révéler très intéressante pour l'étude de la relaxation transversale en présence de gaz étranger. Notons également que la technique des échos répétés de Purcell et Carr (36) pourrait permettre de mesurer directement le coefficient de diffusion de la vapeur orientée au sein du gaz étranger.

CONCLUSION

En conclusion, nous pouvons dire que de nombreux effets nouveaux ont été mis en évidence.

Ces effets ont été prévus théoriquement à partir d'un calcul complet du cycle de pompage optique qui permet de décrire de façon détaillée les processus d'absorption et d'émission de photons de résonance optique par un ensemble d'atomes. Nous avons dégagé les idées importantes qui sont à la base de ce calcul, précisé les conditions de validité de la théorie et présenté une interprétation physique détaillée des différents résultats obtenus, qui sont les suivants :

— Existence d'effets radiatifs associés au processus d'absorption et relatifs à l'état fondamental de l'atome : durée de vie finie de cet état ; déplacement des niveaux d'énergie atomiques causé par des absorptions et réémissions « virtuelles » de photons de résonance optique.

— Existence d'un couplage entre la précession de Larmor de l'état fondamental et celle de l'état excité : modification des écarts Zeeman dans l'état fondamental causée par des transitions « réelles » de résonance optique.

— Conservation partielle de la « cohérence hertzienne » au cours du cycle de pompage optique.

— Existence d'un mouvement forcé du moment angulaire de l'état excité à la fréquence de Larmor de l'état fondamental.

— Possibilité de décrire entièrement l'effet global du cycle de pompage sur l'état fondamental comme une « relaxation optique » longitudinale et transversale.

— Interprétation quantitative des expériences de faisceaux croisés.

Nous avons procédé à une vérification expérimentale de la théorie dans le cas du pompage optique de l'isotope ^{199}Hg . Toutes les prévisions théoriques ont été confirmées de façon quantitative.

Les résultats obtenus peuvent être envisagés de deux points de vue différents :

Sur le plan de l'électrodynamique quantique, ce sont des effets liés aux processus d'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement et ils ont un intérêt intrinsèque.

En ce qui concerne les méthodes de détection optique

de la résonance magnétique, les résultats obtenus prouvent que les mesures précises de structures atomiques dans l'état fondamental faites au moyen de ces méthodes peuvent être entachées d'erreurs par suite de la perturbation associée au faisceau lumineux lui-même. Le présent travail permet de tenir compte de cette perturbation et de préciser les conditions dans lesquelles il faut se placer pour minimiser de tels effets.

Nous pensons que le présent travail peut être prolongé dans les directions suivantes :

— Étude théorique et expérimentale du pompage optique dans le cas où la source lumineuse permet d'obtenir un faisceau cohérent au sens de l'optique (cas des « lasers »). Ceci soulève le problème de la description quantique de la phase du champ de rayonnement.

— Étude théorique et expérimentale du pompage optique en champ nul ou très faible ($\omega_f \ll 1/T_p$). Nous avons vu qu'en champ nul, la dégénérescence est levée par suite du processus d'absorption. Il nous semble intéressant d'étudier les propriétés de symétrie de cette levée de dégénérescence (états propres et valeurs propres de la matrice $A_{\mu,\mu'}$).

— Étude quantitative de la « circulation de cohérence hertzienne » dans le cas où l'intensité ou la polarisation du faisceau lumineux sont modulées à une fréquence voisine de $\frac{\omega_f}{2\pi}, \frac{\omega_e}{2\pi}, \frac{\omega_e \pm \omega_f}{2\pi}$.

— Étude des modifications apportées par un gaz étranger à la « circulation de cohérence hertzienne » le long du cycle de pompage. Cette étude doit apporter des renseignements complémentaires sur les propriétés des collisions entre atomes orientés et atomes de gaz étranger. Sur le plan expérimental, nous pensons que la technique des « échos de spin », détectés par le faisceau croisé, devrait se révéler très utile pour une telle étude.

— Enfin, nous avons souligné le lien qui existait entre les effets radiatifs associés au processus d'excitation optique et les phénomènes d'absorption et de dispersion anormale. Il nous semble intéressant de reprendre de façon plus approfondie cette question qui est liée au problème de la description quantique de l'indice de réfraction.

Appendice

Nous donnons dans cet appendice les valeurs des coefficients $A_{\mu\mu'}$, $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$ pour chacune des deux composantes hyperfines de l'isotope ^{199}Hg et pour diverses polarisations $\vec{e}_{\lambda_0}$. Nous utilisons les relations de définition (III, A, 2, c) et (III, D, 2). Les valeurs des coefficients de Clebsch-Gordan sont représentées sur la figure 47.

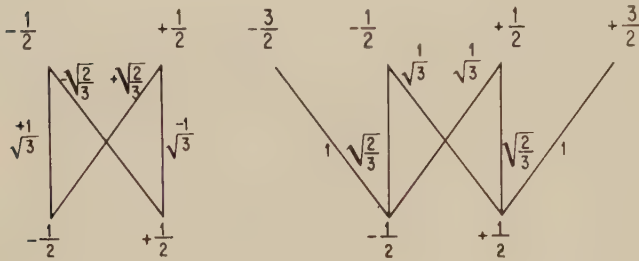


FIG. 47.

Pour les isotopes pairs ($I = 0$), l'opérateur dipolaire électrique $\vec{D}$ a pour éléments de matrice :

$$\langle 0 | \vec{D} | \pm 1 \rangle = \mp \frac{\vec{u}_x \pm i\vec{u}_y}{\sqrt{2}}$$

$$\langle 0 | \vec{D} | 0 \rangle = \vec{u}_z$$

$\vec{u}_x$, $\vec{u}_y$, $\vec{u}_z$ étant les vecteurs unitaires des trois axes Ox , Oy , Oz .

On obtient alors aisément les résultats suivants (seuls sont donnés les éléments de matrice $A_{\mu\mu'}$ non nuls ; pour simplifier, nous désignons par B la quantité $B_{1/2-1/2}^{1/2-1/2}$).

$$\text{Polarisation } \sigma^+ : \vec{e}_{\lambda_0} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{u}_x + i\vec{u}_y).$$

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{-1/2-1/2} = \frac{2}{3} \quad B = 0$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{-1/2-1/2} = \frac{1}{3} \quad A_{1/2-1/2} = 1 \quad B = \frac{1}{3}$$

$$\text{Polarisation } \sigma^- : \vec{e}_{\lambda_0} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{u}_x - i\vec{u}_y).$$

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = \frac{2}{3} \quad B = 0$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{-1/2-1/2} = 1 \quad A_{1/2-1/2} = \frac{1}{3} \quad B = \frac{1}{3}$$

Polarisation π : $\vec{e}_{\lambda_0} = \vec{u}_z$.

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{1}{3} \quad B = \frac{1}{9}$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{2}{3} \quad B = \frac{4}{9}$$

Polarisation σ : $\vec{e}_{\lambda_0} = \vec{u}_y$.

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{1}{3} \quad B = 0$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{2}{3} \quad B = \frac{1}{3}$$

Polarisation σ^+ par rapport à Ox : $\vec{e}_{\lambda_0} = -\frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{u}_y + i\vec{u}_z)$.

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{1}{3}$$

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{1}{3} \quad B = \frac{1}{18}$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = \frac{2}{3}$$

$$A_{1/2-1/2} = A_{-1/2-1/2} = -\frac{1}{3} \quad B = \frac{7}{18}$$

Polarisation σ^- par rapport à Ox : $\vec{e}_{\lambda_0} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{u}_y - i\vec{u}_z)$.

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{1/2 \ 1/2} = A_{-1/2 \ -1/2} = \frac{1}{3}$$

$$A_{1/2 \ -1/2} = A_{-1/2 \ 1/2} = -\frac{1}{3} \quad B = \frac{1}{18}$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{1/2 \ 1/2} = A_{-1/2 \ -1/2} = \frac{2}{3}$$

$$A_{1/2 \ -1/2} = A_{-1/2 \ 1/2} = \frac{1}{3} \quad B = \frac{7}{18}$$

Faisceau de lumière naturelle se propageant suivant Ox.

(Le calcul se fait en sommant indépendamment sur deux polarisations orthogonales σ et π par exemple, ou σ^+ par rapport à Ox et σ^- par rapport à Ox).

Composante $\frac{1}{2}$:

$$A_{1/2 \ 1/2} = A_{-1/2 \ -1/2} = \frac{1}{3} \quad B = \frac{1}{18}$$

Composante $\frac{3}{2}$:

$$A_{1/2 \ 1/2} = A_{-1/2 \ -1/2} = \frac{2}{3} \quad B = \frac{7}{18}$$

Soit $\vec{e}_{\lambda_0}$ la polarisation d'un faisceau qui se propage suivant Ox. Soient $\vec{e}_{\lambda_1}$ et $\vec{e}_{\lambda_2}$ les deux polarisations orthogonales circulaire droite et circulaire gauche par rapport à Ox. On a :

$$\vec{e}_{\lambda_0} = a_1 \vec{e}_{\lambda_1} + a_2 \vec{e}_{\lambda_2}.$$

On peut montrer aisément à partir des résultats précédents que dans le cas de ^{199}Hg :

$$A_{\mu\mu'}(\vec{e}_{\lambda_0}) = |a_1|^2 A_{\mu\mu'}(\vec{e}_{\lambda_1}) + |a_2|^2 A_{\mu\mu'}(\vec{e}_{\lambda_2}).$$

L'absorption, $L_A(\vec{e}_{\lambda_0}) = 1/T_p \sum_{\mu\mu'} A_{\mu\mu'}(\vec{e}_{\lambda_0}) \sigma_{\mu'\mu}$ peut donc se calculer en sommant indépendamment sur les composantes circulaires droite et gauche de $\vec{e}_{\lambda_0}$. Ceci est la justification du fait qu'on peut observer une modulation sur le courant photoélectrique de C (fig. 15), même si la polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$ est non cohérente, à condition de placer un analyseur circulaire A devant C.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) ABRAGAM (A.). — *Principles of nuclear magnetism*, chap. 8. Oxford, at the Clarendon Press, 1961.
- (2) BARRAT (J.-P.). — *Thèse Paris*, 1959; *J. Phys. Rad.*, 1959, **20**, 541, 633 et 657.
- (3) BARRAT (J.-P.). — *Proc. Roy. Soc.*, 1961, **A263**, 371.
- (4) BARRAT (J.-P.) et COHEN-TANNOUDJI (C.). — *J. Phys. Rad.*, 1961, **22**, 329.
- (5) BARRAT (J.-P.) et COHEN-TANNOUDJI (C.). — *J. Phys. Rad.*, 1961, **22**, 443.
- (6) BELL (W. E.) et BLOOM (A. L.). — *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 1559.
- (7) BELL (W. E.) et BLOOM (A. L.). — *Phys. Rev. Letters*, 1961, **6**, 280.
- (8) BLAMONT (J.-E.). — *Thèse Paris*, 1956; *Ann. de Phys.*, 1957, **2**, 551.
- (9) BROSSEL (J.) et KASTLER (A.). — *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1949, **229**, 1213.
- (10) BROSSEL (J.). — *Thèse Paris*, 1951; *Ann. de Phys.*, 1952, **7**, 622.
BROSSEL (J.) et BITTER (F.). — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 311.
- (11) BROSSEL (J.). — *Quantum Electronics*. Édité par Ch. H. Townes, Columbia University Press, New York, 1960, p. 81.
- (12) BROSSEL (J.). — *Advances in Quantum Electronics*. Columbia University Press, New York, 1961, p. 95.
- (13) BROSSEL (J.). — *Year Book Phys. Soc. (London)*, 1960, p. 1.
- (14) CAGNAC (B.). — *Thèse Paris*, 1960; *Ann. de Phys.*, 1961, **6**, 467; *J. Phys. Rad.*, 1958, **19**, 863.
- (15) COHEN-TANNOUDJI (C.). — Diplôme d'études supérieures, Paris, 1956; *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1957, **244**, 1027.
- (16) COHEN-TANNOUDJI (C.). — *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1961, **252**, 394.
- (17) COHEN-TANNOUDJI (C.). — *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1961, **253**, 2662.
- (18) COHEN-TANNOUDJI (C.). — *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1961, **253**, 2899.
- (19) COHEN-TANNOUDJI (C.). — *Rendiconti S. I. F.*, XVII Corso, p. 240.
- (20) COLEGROVE (D. F.), FRANKEN (P. A.), LEVIS (R. R.), SANDS (R. H.). — *Phys. Rev. Letters*, 1959, **3**, 420.
FRANKEN (P. A.). — *Phys. Rev.*, 1961, **121**, 508.
- (21) DEHMELT (H. G.). — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1924.
- (22) DODD (J.), FOX (W.), SERIES (G. W.) et TAYLOR (M.). — *Proc. Phys. Soc.*, 1959, **74**, 789.
SERIES (G. W.). — *The Ann Arbor Conference on Optical Pumping*. The University of Michigan, 1959, p. 149.
- (23) GUIOCHON (M.-A.), BLAMONT (J.-E.) et BROSSEL (J.). — *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1956, **243**, 1859; *J. Phys. Rad.*, 1957, **18**, 99.
- (24) HANBURY BROWN (R.) et TWISS (R. Q.). — *Phil. Mag.*, 1954, **45**, 663; *Proc. Roy. Soc. (London)*, 1958, **A 248**, 199, 222.
- (25) HEITLER (W.). — *The Quantum theory of radiation* (3^e éd.). Oxford, at the Clarendon Press, 1954.
- (26) KASTLER (A.). — *J. Phys. Rad.*, 1950, **11**, 255.

- (27) KASTLER (A.). — *C. R. Acad. Sci. (Fr.)*, 1961, **252**, 2396.
- (28) LAMB (W. E.). — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, A **14**, 19.
- (29) MESSIAH (A.). — *Mécanique Quantique*. Dunod, Paris, 1959.
- (30) MITCHELL (A. C. G.) et ZEMANSKY (M. W.). — *Resonance radiation and excited atoms*. Cambridge University Press, London, 1934.
- (31) SCHAWLOW (A.) et TOWNES (C. H.). — *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 1940.
- (32) YVON (J.). — *Éléments de mécanique statistique*. Cours Polycopié, C. E. A., Saclay.
- (33) YVON (J.). — *J. Phys. Rad.*, 1960, **21**, 38.
- (34) ARDITI (M.) et CARVER (T. R.). — *Phys. Rev.*, 1961, **124**, 800.
- (35) BLOCH (F.). — *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 460.
- (36) CARR (H. Y.) et PURCELL (E. M.). — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 630.
- (37) McDERMOTT (M. N.) et NOVICK (R.). — *J. O. S. A.*, 1961, **51**, 1008.
- (38) HAHN (E.). — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 580.
- (39) SHEARER (L. D.). — *Phys. Rev.*, 1962, **127**, 512.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Relaxation quadrupolaire de l'isotope ^{201}Hg sur des parois de quartz

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 28 novembre 1962.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

MARC ZAMANSKY.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

Le Recteur de l'Académie de Paris,

JEAN ROCHE.

C. COHEN-TANNOUDJI

Imprimé avec les *Annales de Physique*.

Le Gérant : G. MASSON

DÉPÔT LÉGAL : 1963, 4^e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3908, MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. LAVAL, N° 4544. — 12-1962.



Thèse publiée par les *ANNALES DE PHYSIQUE*, 13^e Série - Tome 7, 1962 p. 423